



YALE UNIVERSITY
LIBRARY



STERLING
CHEMISTRY LABORATORY

WITHDRAW

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND

MIT 275 FIGUREN IM TEXT



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

Alle Rechte vorbehalten

Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages
ist es auch nicht gestattet, einzelne Beiträge oder Teile daraus
auf photomechanischem Wege (Photokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen

Springer-Verlag, Berlin · Göttingen · Heidelberg

Printed in Germany

1
Z37
v.150

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften

Druck der Universitätsdruckerei H. Stürtz AG., Würzburg

Inhalt des 150. Bandes

Erstes Heft

(Abgeschlossen am 21. Dezember 1957)

	Seite
CALIFANO, S., und M. CZERNY, Absorptionsverlauf bei NaCl und KBr im kurzwelligen Ultrarot. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 17. September 1957)	1
NEUHAUS, H., Die Hyperfeinstruktur der Indiumhydrid-Banden. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 5. September 1957)	4
BAYH, W., Emissionsmikroskopie mit Sekundärelektronen (15 keV-Primärelektronen). Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 7. September 1957)	10
MÖLLENSTEDT, G., H. SEILER und G. JUNGER, Ionenbilder in Durchstrahlung. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 19. August 1957)	16
MÜSER, H. E., und H. FLUNKERT, Obere Curie-Temperatur und Domänenstruktur in verschiedenen Gebieten von Seignettesalz-Kristallen. Mit 10 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. Juli 1957)	21
GEHARDT, W., und O. OSBERGHAUS, Ein Halbleiterdetektor für Schwefel- und Selenmolekularstrahlen. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. September 1957)	33
RAETHER, M., Das Zerfallsschema des Ag^{105} . Mit 12 Figuren im Text. (Eingegangen am 14. September 1957)	38
KLIER, M., Die Temperaturabhängigkeit der optischen Konstanten von Lithiumfluorid und Natriumfluorid im Ultraroten. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 17. September 1957)	49
KOPPE, H., Eine Extremaleigenschaft der freien Energie. (Eingegangen am 5. November 1957)	64
SCHÖNHOFER, A., Zur Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bändermodell des Festkörpers. (Eingegangen am 7. September 1957)	67
MINTEN, A., und O. OSBERGHAUS, Die Erzeugung von intensiven Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase. Wirkungsquerschnitte für den Stoß $\text{H}_2\text{--H}_2$ und $\text{H}_2\text{--N}_2$. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. Oktober 1957)	74
BIENLEIN, H., R. FLEISCHMANN und H. WEGENER, Die Polarisation der Co^{60} -Elektronen. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 24. Oktober 1957) .	80
RISCH, K., Das Spektrum der <i>M</i> - und <i>L</i> -Auger-Elektronen von $^{212}_{83}\text{Bi}$ und $^{208}_{81}\text{Tl}$. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. Oktober 1957) . . .	87
REIMER, L., Magnetische Eigenschaften und elektronenmikroskopische Struktur elektrolytisch niedergeschlagener dünner Schichten aus Nickel-Eisen-Legierungen. Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. September 1957)	99
BORN, M., und W. LUDWIG, Zur Quantenmechanik des kräftefreien Teilchens. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. September 1957)	106
KOHLER, M., Invariante Flächen der Elektrodynamik. (Eingegangen am 8. Oktober 1957)	118
Berichtigung zu D. HAHN und F. W. SEEMANN: Die Bedeutung von Randschichten und Polarisationsfeldern für die Elektrolumineszenz. Diese Zeitschrift Bd. 149, S. 486 bis 503 (1957)	122

Zweites Heft

(Abgeschlossen am 27. Januar 1958)

	Seite
SCHMILLEN, A., Zur Frage der Energieübertragung in festen Polyacetylenlösungen. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 15. Oktober 1957)	123
HEINTZE, J., Relativmessungen der Polarisation von β -Teilchen Tl^{204} , Au^{198} , $Sr^{90} + Y^{90}$. Mit 5 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. Oktober 1957)	134
DANIEL, H., β -Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58} . Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. November 1957)	144
HERRE, F., und H. RICHTER, Berechnung der Atomverteilungskurven verschiedener Strukturmodelle. Mit 9 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. September 1957)	149
DAVID, E., Physikalische Vorgänge bei elektrischen Drahtexplosionen. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 1. August 1957)	162
FROMMHOLD, L., Zur Statistik der Elektronenlawinen im ebenen Feld. II. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. September 1957)	172
HETTNER, G., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 4. November 1957)	182
THEIS, W.R., Der Einfluß der Elektronenpolarisation auf den Wirkungsquerschnitt für Paarvernichtung im Flüge. (Eingegangen am 15. Juni 1957)	198
BÖCKMANN, K., G. KRAMER und W.R. THEIS, Der Einfluß der Polarisation auf die Wirkungsquerschnitte für Møller- und Bhabha-Streuung. Eingegangen am 10. Oktober 1957)	201
BOLDT, G., Messung der Absorptionssoszillatorenstärke der Magnesium-Interkombinationslinie bei 4571 Å. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. September 1957)	205
VOIGTLAENDER-TETZNER, G., Zur Theorie der röntgenographischen Verteilungskurven von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen. Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 15. Oktober 1957)	215
WIENECKE, R., Über das Auftreten von Dampfstrahlen in Kohlelichtbögen hoher Stromstärken. I. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 4. November 1957)	231
SODHA, M. S., and P. C. EASTMAN, Mobility of electrons in nondegenerate semiconductors considering electron-electron scattering. With 1 Figure in the text. (Eingegangen am 11. November 1957)	242

Drittes Heft

(Abgeschlossen am 14. Februar 1958)

KRETSCHMAR, M., Über die multiple Mesonenproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen und bei der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 16. Oktober 1957)	247
STICHEL, P., Die Frage der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen. (Eingegangen am 25. Oktober 1957)	264
KESSEMEIER, H., Über die Wirkung eines Doppelgitters auf die Ladungsträger einer unselbständigen Entladung. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 2. November 1957)	272
REIMER, L., Messungen des Hall-Effektes an ferromagnetischen Nickelschichten. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. November 1957)	277
KRISHNAMURTHY, V. G., Ultra-violet bands of mercury chloride. With 1 Figure in the text. (Eingegangen am 7. Oktober 1957)	287

	Seite
MARSCHALL, H., und TH. SCHMIDT, Potentialkurven und Energieniveaus der μ -Mesonenmoleküle ($p\bar{p}\mu$, $(d\bar{p})\mu$, $(dd)\mu$. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 23. November 1957)	293
SCHMIDT-TIEDEMANN, K. J., Elektronenmachlieferung in den Gasen N_2 , H_2 und O_2 bei niedrigen Drucken ($p d \approx 50$ Torr · cm). Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 2. November 1957)	299
BEHR, J. V., Die Berechnung der Kern-Quadrupol Streuung positiver Myonen im schwach relativistischen Energiebereich. Mit 5 Figuren im Text. (Eingegangen am 23. November 1957)	311
HOPKINS, M. R., and R. LL. GRIFFITH, The determination of the Lorenz number at high temperatures. (Eingegangen am 25. April 1957)	325
SCHORYGIN, P., und L. KRUSCHINSKI, Abhängigkeit der Intensität der Raman-Linien von der Frequenz des Erregerlichtes im Resonanzgebiet. (Eingegangen am 21. Dezember 1957)	332
BÖTTICHER, W., Quantitative Messung des 3^3P -Seriengrenzkontinuums von Mg. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. September 1957)	336
LUDWIG, G., Zum Ergodensatz und zum Begriff der makroskopischen Observablen. I. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 25. September 1957)	346
CAPPELLER, U., und R. KLINGELHÖFER, Über die Messung der Winkelkorrelationen im γ -Spektrum des ^{160}Tm . Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 9. November 1957)	375

Viertes Heft

(Abgeschlossen am 10. März 1958)

WEIDENMÜLLER, H.-A., Nukleonenpolarisation bei Strippingreaktionen. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 5. November 1957)	389
ASCOLI, G., Transformation of "Spin Direction" by Ordinary Lorentz Transformation. With 4 figures in the text. (Eingegangen am 5. Dezember 1957)	407
KLITZING, K. H. V., und J. GIELESSSEN, Über den Einfluß allseitigen Drucks auf die Magnetisierbarkeit von Au_2Mn . Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 5. Dezember 1957)	409
LEIPFINGER, H., Die magnetischen Eigenschaften von seltenen Erdmetallen bei sehr tiefen Temperaturen. Mit 11 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. November 1957)	415
GUDDEN, F., und J. EICHLER, Winkel- und Energieverteilung der Photoprotonen aus dem Prozeß $A^{40}(\gamma, p)\text{Cl}^{39}$. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 18. November 1957)	436
DESTRIAUX, G., Der Gedächtniseffekt bei der Verstärkung der Lumineszenz durch elektrische Felder. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. Dezember 1957)	447
ENGELMANN, F., Bemerkungen zur Einführung des 3-dimensionalen Ladungsraums. (Eingegangen am 15. August 1957)	456
BRIX, P., U. HEGEL, K. H. LINDENBERGER und D. QUITMANN, Relativmessung integrierter Wirkungsquerschnitte für den Kernphotoeffekt: Die Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 7. Dezember 1957)	461
MÜHLSCHLEGEL, B., und H. KOPPE, Theorie der Vielfachstreuung polarisierter Elektronen. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 7. Dezember 1957)	474
LEIBFRIED, G., und H. HAHN, Zur Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten von Alkalihalogenidkristallen. Mit 10 Figuren im Text. (Eingegangen am 19. November 1957)	497
Berichtigung zur Arbeit BARTELS, H., und R. BEUCHELT: Über die typischen Erscheinungsformen im Spektrum dichter Plasmen. I. Erschienen in Bd. 149, S. 594—607 (1957)	526

Fünftes (Schluß-)Heft

(Abgeschlossen am 8. April 1958)

	Seite
HANSZEN, K.-J., Der Einfluß von Oberflächenfremdschichten auf die Strukturveränderungen dünner Metallaufdampfschichten beim Tempern. Mit 15 Figuren im Text. (Eingegangen am 25. September 1957)	527
LÄMMERMANN, H., Zeeman-Effekt und Analyse der Spektren des dreiwertigen Samariums in Einkristallen verschiedener Symmetrie. Mit 16 Figuren im Text. (Eingegangen am 22. Oktober 1957)	551
ARTMANN, K., Die Bedeutung der Hartreeschen Atomeigenfunktionen für die Quantenchemie. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 28. November 1957)	573
THEIS, W.R., Eine Rangordnung der einzelnen Terme in den schwachen Wechselwirkungen. (Eingegangen am 20. Dezember 1957)	590
HAUSER, U., Energiereiche γ -Übergänge geringer Intensität beim Zerfall $^{131}_{83}\text{Bi}^{214}(\text{RaC}) \xrightarrow{\beta} ^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. Dezember 1957)	593
HAUSER, U., Über den γ - und α -Zerfall der angeregten Zustände von $^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. Januar 1958) . . .	599
WULFF, H., Die Linienprofile thermisch angeregter Heliumlinien. Mit 9 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. September 1957)	614
KRANZ, J., und W. DRECHSEL, Über die Beobachtung von Weißschen Bereichen in polykristallinem Material durch die vergrößerte magneto-optische Kerndrehung. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. Januar 1958)	632
JACKSON, J.D., S.B. TREIMAN and H.W. WYLD jr., Note on Relativistic Coulomb Wave Functions. (Eingegangen am 24. Januar 1958)	640
HITTMAIR, O., Ausbeute von $(d, 2n)$ -Reaktionen im Kontinuumbereich. (Eingegangen am 20. September 1957)	648
RADICELLA, R., J. RODRÍGUEZ, G.B. BARÓ und O. HITTMAIR, Die Ausbeute der Kernreaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 10. Oktober 1957)	653
LAUTERJUNG, K.H., B. SCHIMMER und H. MAIER-LEIBNITZ, Die Art der Gamow-Teller-Wechselwirkung beim Zerfall von Li^8 . Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. März 1958)	657
Autorenverzeichnis	660

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Frankfurt a.M.

Absorptionsverlauf bei NaCl und KBr im kurzwelligen Ultrarot

Von

S. CALIFANO und M. CZERNY

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 17. September 1957)

Es wird eine Methode beschrieben, die es ermöglicht, schwache Strahlungsabsorption an Kristallplatten großer Dicke (bis zu 30 cm) im Ultraroten zu messen. Sie wird dazu benutzt, um bei NaCl- und KBr-Kristallen das Auslaufen der Absorption auf der kurzwelligen Seite der Eigenschwingung zu verfolgen.

Im Zusammenhang mit den in der vorhergehenden Arbeit von M. KLIER mitgeteilten Untersuchungen über das optische Verhalten der Alkalihalogenid-Kristalle im Ultraroten soll hier über eine kleine Gruppe von Messungen berichtet werden, deren Ziel in ähnlicher Richtung lag. Es geht um die Frage, wie der Verlauf des Absorptionsvermögens dieser Kristalle im Ultraroten in dem Wellenlängenbereich ist, wo die Absorption auf der kurzwelligen Seite der Eigenschwingung abklingt. Wir knüpfen dabei im wesentlichen an eine Veröffentlichung von A. MENTZEL¹ an, der an drei Alkalihalogenid-Kristallen diese Frage studierte, wobei er teils eigene Messungen, teils solche früherer Beobachter zugrunde legte. Er hat seine Ergebnisse in einer Figur zusammenfassend dargestellt, die hier nochmals wiedergegeben wird, weil sie das Typische besonders gut zeigt und auch Gelegenheit bietet, die Resultate der vorliegenden Messungen einzufügen.

Zur Kennzeichnung der Absorption verwendet MENTZEL die dimensionslose Größe k , die durch die Beziehung $I = I_0 \exp(-4\pi k d/\lambda)$ definiert ist. d ist die von der Strahlung im absorbierenden Medium durchlaufene Strecke, λ die Wellenlänge der Strahlung in Luft. Um für verschiedene Kristallarten einen vergleichbaren Wellenlängen-Maßstab zu bekommen, hat er die dimensionslose Größe λ/λ_0 eingeführt, wobei λ die Wellenlänge der Strahlung in Luft ist und λ_0 die Wellenlänge, die der ultraroten Eigenschwingung des Kristalls entspricht.

Unter Verwendung dieser beiden dimensionslosen Größen für die Ordinate und die Abszisse erhielt er in halblogarithmischer Darstellung die Kurvenzüge der Figur. Das Auffallende ist einerseits der gleiche Neigungswinkel der Kurven im geradlinigen Teil, der sich über mehrere

¹ MENTZEL, A.: Z. Physik **88**, 194 (1934).

Zehnerpotenzen von k erstreckt, andererseits das Abbiegen aus dieser Richtung bei den kleinsten k -Werten im Sinne eines fast plötzlichen Aufhörens jeglicher Absorption. Ein gleiches Verhalten fand später HOHLS² bei LiF und NaF. Seine Messungen wurden jetzt im Rahmen der schon erwähnten Arbeit von KLIER weitgehend bestätigt. Beim NaF fallen die Meßpunkte mit denen von NaCl fast zusammen, erstrecken sich aber über keinen so großen Meßbereich. Beim LiF, wo ebenfalls der Meßbereich kleiner ist, liegen die gefundenen k -Werte etwa

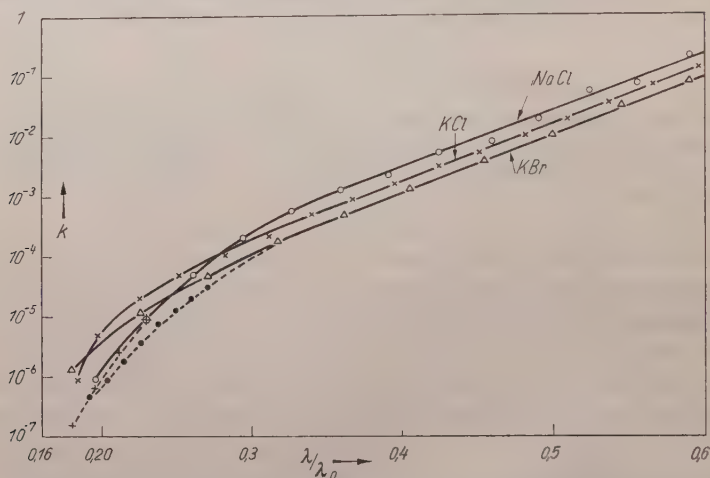


Fig. 1. Verlauf des Extinktionskoeffizienten k in Abhängigkeit von der relativen Wellenlänge λ/λ_0 . O NaCl nach der Arbeit von MENTZEL, \times KCl nach der Arbeit von MENTZEL, Δ KBr nach der Arbeit von MENTZEL, + NaCl nach den vorliegenden Messungen. \bullet KBr nach den vorliegenden Messungen, $\lambda_0 = 61,4 \mu$ für NaCl, $70,7 \mu$ für KCl und $88,3 \mu$ für KBr

$1\frac{1}{2}$ Zehner-Potenzen höher. Davon abgesehen ist aber der Kurvenverlauf im wesentlichen der gleiche.

Es schien uns einer Nachprüfung wert, ob das Abbiegen des Kurvenverlaufes bei den kleinsten k -Werten reell ist. Die Gefahr, gerade dort unzuverlässige Ergebnisse zu erhalten, ist natürlich besonders groß. Die k -Werte, die den Mentzelschen Kurven zugrunde liegen, sind mit Kristallplatten gewonnen worden, deren Dicke 1 cm nicht wesentlich überstieg. Uns standen durch freundliches Entgegenkommen der Optischen Werke Leitz, Wetzlar, zwei Kristallblöcke aus NaCl zur Verfügung, die eine Länge von 10,52 und 16,77 cm hatten und zwei Blöcke aus KBr mit den Längen 15,15 und 16,80 cm. Daher war die Möglichkeit geboten, die kleinsten k -Werte unter meßtechnisch günstigeren Bedingungen nachzuprüfen.

Die Ergebnisse der neuen Messungen sind in der Figur als zwei gestrichelte Linienzüge eingetragen. Beim NaCl bestätigen und sichern sie

² HOHLS, H. W.: Ann. Physik **29**, 433 (1937).

die früheren Messungen. Beim KBr ergibt sich ein stärkeres Abbiegen vom geradlinigen Verlauf als früher, jedoch in einer dem NaCl-Verlauf analogen Weise. Eine theoretische Erfassung dieses ganzen Absorptionsverlaufes steht, soweit uns bekannt, noch aus.

Die Ausführung der Durchlässigkeitsmessungen an den langen Kristallblöcken (bis zu 30 cm Länge) bot eine gewisse meßtechnische Schwierigkeit. Das Arbeiten im sog. parallelen Strahlengang kommt nicht in Betracht, da der parallele Strahlengang einen verschwindend kleinen Energiestrom darstellt. Die Blöcke mußten daher in ein merklich konvergentes Büschel gestellt werden. Dann rufen sie aber eine erhebliche Veränderung der Geometrie des Strahlenganges hervor. Es mußte Vorkehrung getroffen werden, daß dies keine Änderung des Ausschlages des Empfangsinstrumentes bedingte und dadurch die Absorptionsmessungen fälschte.

Die Anordnung war die folgende: Die Strahlungsquelle wurde mittels einer Linse aus KRS 5-Material auf den Eintritts-Spalt des Prismen-Monochromators abgebildet. Der Abstand der Linse vom Spalt betrug 14 cm. Das reelle Bild, das die Linse von dem Spalt entwarf, lag 33 cm vor der Linse. Normalerweise hätte man an den Ort dieses reellen Bildes die Strahlungsquelle gestellt und ihre Größe etwa gleich der Größe dieses Spaltbildes gemacht. Stattdessen wurde aber eine wesentlich größere Strahlungsquelle mit gleichmäßiger Leuchtdichte gewählt. Dazu diente eine sorgfältig geschwärzte ebene Fläche von $4 \times 11 \text{ cm}^2$ Größe, die von der Rückseite her durch elektrisch beheiztes Paraffin auf etwa 200°C erwärmt wurde. Bei einer solchen gleichmäßig strahlenden, überdimensionierten Strahlungsquelle tritt keine Änderung des Ausschlages des Empfangsinstrumentes ein, wenn sie um erhebliche Strecken aus dem Ort des reellen Spaltbildes nach vorn oder nach hinten verschoben wird, solange nur ihre Fläche noch größer ist als der Querschnitt des durch die Apertur der ganzen Anordnung gegebenen Strahlenbüschels.

Wird nun ein dicker Kristallblock mit ebenen Endflächen zwischen Strahlungsquelle und Linse gesetzt, so verlaufen die aus dem Block austretenden Strahlen so, als ob sie von einem virtuellen Bild der Strahlungsquelle käme, das näher nach der Linse hin liegt als die Strahlungsquelle selbst. Auf den Ausschlag des Empfangsinstrumentes hat dies aber aus dem oben angegebenen Grunde keinen Einfluß.

Die ungewöhnlich tiefe Temperatur der Strahlungsquelle ergab zwar nur einen geringen Strahlungsstrom und zwang daher zu häufiger Wiederholung der Messungen, um die zufälligen Fehler herabzudrücken, sicherte aber vor einer Verfälschung der Strahlung durch kurzwellige Anteile, die eine zu große Durchlässigkeit der Kristalle vorgetäuscht hätten.

Wir danken den Optischen Werken Leitz, Wetzlar, für die wesentliche Unterstützung der Untersuchungen.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Stockholm

Die Hyperfeinstruktur der Indiumhydrid-Banden

Von

HINREK NEUHAUS

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. September 1957)

Die Hyperfeinstruktur (Hfs) der visuellen InH-Banden ist mit hoher Auflösung untersucht worden. Die $R(0)$ - $Q(1)$ -, und $P(2)$ -Linien der $(0-0)$, $^3\Pi_1 - X^1\Sigma^+$ -Bande zeigen eine deutliche Hfs. Diese Linien sind in drei Hfs-Komponente aufgespalten. Ein neues Bandensystem $^1\Pi - X^1\Sigma^+$, dessen Rotationslinien keine Hfs aufweisen, ist beobachtet und analysiert. Die Hfs der InH-Banden wird als eine kernmagnetische Hfs interpretiert.

Experimentelles

Das hohe Auflösungsvermögen des Hulthén-Immersionsgitters [1] hat es ermöglicht, bei einigen optischen Molekülspektren eine Hyperfeinstruktur (Hfs) der Rotationslinien zu entdecken. Derartige Hfs-Untersuchungen, die schon von Beginn günstig ausgefallen sind, wurden mit Emissionsspektren des Wismuthydrids [2] und -deutrids begonnen und mit den Absorptionsspektren des Indiumhydrids und -deutrids fortgesetzt. Auch die InH- und InD-Spektren weisen ausgeprägte Hfs auf, bei deren Untersuchung sich ein neues Bandensystem offenbarte.

Als Absorptionszelle wurde ein mit zwei planparallelen Quarzfenstern verschlossenes, 70 cm langes Klar-Quarzrohr von 3 cm Durchmesser verwendet, welches mit einem reinen Wasserstoff oder Deuterium enthaltenden Behälter verbunden war und unter 0,2 bis 1 Atm Druck gehalten wurde. Das Quarzrohr wurde in einem entsprechend langen elektrischen Ofen aus 900 bis 1250° C erhitzt.

Um eine höhere Absorption zu erreichen, wurde das kontinuierliche Licht einer Zirkonium-Oxidlampe zweimal durch das Rohr geführt.

Die Aufnahmen sind mit einem großen „Bausch and Lomb“ Plan-gitter (Fläche 100×200 mm, 300 Striche per mm), dessen Auflösungsvermögen und Dispersion sich durch das Immersionsverfahren etwa verdoppelt, ausgeführt worden.

Das Immersionsgitter (Dispersion 5,7 mm/Å bei λ 4500 Å, Blaze 60°) ist in der Littrowschen Aufstellung verwendet, d.h. in der Autokollimation durch eine achromatische Linse mit einer Brennweite von 3,6 m.

Eine exakte Bestimmung der unbekannten Wellenzahlen wurde mit Hilfe der Interferenzstreifen [3], [4] von einem Fabry-Perot Interferometer, welches mit kontinuierlichem Licht beleuchtet und vor den Spektrographenspalt gestellt war, erreicht.

Meßergebnisse

Die ersten Arbeiten über das Bandenspektrum des InH sind von GRUNDSTRÖM [5] ausgeführt. Er hat 12 Emissionsbanden zwischen λ 5650 Å und λ 7250 Å analysiert, welche nach KLEMAN [6] den Übergängen ${}^3\Pi_0 - X^1\Sigma^+$ und ${}^3\Pi_1 - X^1\Sigma^+$ zugeschrieben werden können. In der vorliegenden Untersuchung sind die Grundströmschen Banden bis λ 6300 Å in Absorption verfolgt worden. Die oben erwähnten neuen

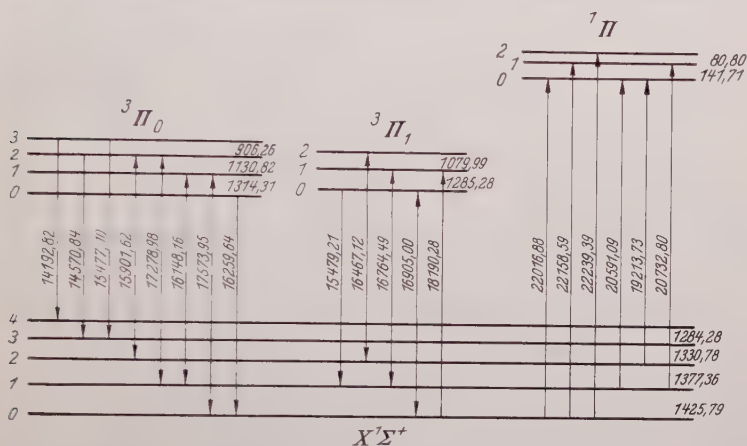


Fig. 1. Die Kernschwingungsniveaus des Grundzustandes $X^1\Sigma^+$ und der angeregten Zustände ${}^1\Pi$, ${}^3\Pi_0$ und ${}^3\Pi_1$ des Indiumhydrids

Banden treten im blauen, in der Nähe der Indiumlinie λ 4511 Å, und im grünen Spektralgebiet hervor. Sieben Banden wurden analysiert. Sämtliche Banden bestehen aus einfachen nach Rot abgeschatteten R-, P- und Q-Zweigen. Sechs dieser Banden gehören zu einem in früheren Arbeiten nicht bekannten Elektronensystem. Man kann nach KLEMAN [6] vermuten, daß es sich hier um einen ${}^1\Pi - X^1\Sigma^+$ -Übergang handelt, bei welchem der ${}^1\Pi$ -Term in ${}^2P^0_{3/2}(\text{In}) + {}^2S_{1/2}(\text{H})$ und der $X^1\Sigma^+$ -Term in ${}^2P_{1/2}(\text{In}) + {}^2S_{1/2}(\text{H})$ dissoziiert werden.

Die siebente Bande kann wegen ihrer Lage nach GRUNDSTRÖM als (1—0)-Bande des Systemes ${}^3\Pi_1 - X^1\Sigma^+$ gedeutet werden. Der Unterschied zwischen den B_v -Werten in den oberen und unteren Zuständen des (1—0)-Bandes ist klein ($\Delta B \cong 0,0005 \text{ cm}^{-1}$); infolgedessen sind die fünf ersten Q-Linien zwischen 18190,48 und 18190,07 cm^{-1} stark zusammengedrängt, so daß sie nicht in Einzellinien aufgelöst werden konnten. Die Wellenzahlen der Linien (in cm^{-1}) und die graphisch bestimmten Bandenkonstanten sind in den Tabellen 1, 2 und 3 wiederzufinden. Das Nullagenschema (Fig. 1) ist mit den Nullagen aus GRUNDSTRÖMS Arbeit ergänzt worden. Die mit s bzw. \ddot{u} bezeichneten Stellen in den Tabellen 1 und 2 sind die Linien, die wegen der schwachen

Intensität bzw. Überlagerung von anderen Linien nicht gemessen werden konnten. Von $^1H - X^1\Sigma^+$ -Banden hat die (0—0)-Bande die größte

Tabelle 1. $^1H - X^1\Sigma^+$

$\sigma(2,0) = 22\,239,39$				$\sigma(1,0) = 22\,158,59$		
<i>J</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>
0		22 242,13			ü	
1	22 232,22	37,63		22 152,55	ü	
2	17,79	25,65	22 212,59	40,44	22 151,75	22 132,90
3	195,80	5,71	188,41	22,14	37,00	10,97
4	65,75	176,17	ü	2 097,50	15,86	2 082,91
5	29,12		117,24	66,52	2 088,34	48,58
6			22 068,19	29,10	54,94	7,88
7				1 985,74	14,83	1 960,87
8						8,02
9						849,03

$\sigma(0,0) = 22\,016,88$				$\sigma(1,1) = 20\,732,80$		
<i>J</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>
0		22 024,68			s	
1	22 014,83	30,10		s	20 734,64	
2	10,38	33,16	21 995,20	20 715,44	26,81	s
3	3,60	33,42	80,91	698,04	12,91	s
4	1 994,03	30,47	64,22	74,53	692,87	s
5	81,24	23,23	45,01	44,92	66,80	20 626,97
6	64,22	9,22	22,49	9,28	35,04	588,02
7	40,37	1 982,62	895,77	567,82	s	42,96
8	3,91	37,93	62,35			492,35
9			16,35			35,84
10			752,41			

$\sigma(0,1) = 20\,591,09$				$\sigma(0,2) = 19\,213,73$		
<i>J</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>	<i>Q</i>	<i>R</i>	<i>P</i>
0		20 598,85			19 221,77	
1	20 589,32	604,55		19 212,47	27,71	
2	85,41	8,19	20 570,18	9,14	31,93	19 193,87
3	79,48	9,28	56,78	4,02	33,86	81,33
4	71,04	7,50	41,33	196,71	33,15	66,98
5	59,68	1,66	23,41	86,73	28,71	50,45
6	44,31	589,32	2,61	73,01	18,07	31,27
7	22,48	64,76	477,85	53,09	195,39	8,45
8	488,25		46,65	21,11		19 079,51
9			3,25			38,61

Intensität, dann kommen die (1—0)-, (2—0)- und (0—1)-Banden und schließlich die (0—2)- und (1—1)-Banden.

Die Banden des $^1H - X^1\Sigma^+$ -Überganges zeigen eine starke Störung, die sich durch eine Prädissoziation und abnorm große Koeffizienten von $J^3(J+1)^3$ usw. äußert.

Tabelle 2. $^3\Pi_1 - X^1\Sigma^+$

$\sigma(1,0) = 18\,190,28$							
J	Q	R	P	J	Q	R	P
0		18 200,29		12	18 185,15	18 310,25	18 070,60
1	\ddot{u}	10,13		13	83,38	17,60	59,92
2	\ddot{u}	19,91	s	14	81,20	24,32	48,98
3	\ddot{u}	29,68	18 160,89	15	78,44	30,40	37,68
4	\ddot{u}	39,32	51,04	16	75,06	35,74	25,92
5	\ddot{u}	48,92	41,22	17	70,93		13,75
6	18 189,87	58,37	31,35	18	66,04		0,96
7	89,57	67,66	21,44	19	60,11		
8	89,10	76,78	11,50	20	53,07		
9	88,49	85,64	1,46	21	44,70		
10	87,66	94,21	18 091,35	22	34,81		
11	86,56	302,42	81,05	23	22,94		

Tabelle 3. Rotations- und Kernschwingungskonstanten

	B_v	$D_v \cdot 10^{+3}$	
$^1\Pi, v' = 0$	3,850	3,89	$\sigma_e = 22\,654,37 \text{ cm}^{-1}$
1	1,915	2,52	$\omega_e = 202,62 \text{ cm}^{-1}$
2	1,363	4,20	$\omega_e x_e = 30,45 \text{ cm}^{-1}$

Wie aus Tabelle 1 und 2 hervorgeht, ist die Anzahl der Linien in jeder Bande sehr gering. Die R -, P - und Q -Zweige brechen mehr oder weniger schroff ab, ohne daß sich die Linien verbreitert haben. Die Spektrogramme weisen überdies in der Nähe der Indiumlinie ($\lambda 4511 \text{ \AA}$) einige diffuse und sehr verbreiterte (1 bis 2 cm^{-1}) Linien auf, welche sich nicht in die analysierten Banden einordnen lassen.

Im grünen Gebiet des Spektrums ($\lambda 5640 \text{ \AA}$) liegen noch einzelne sehr schwache Bandenfragmente. Ob sie zu dem $^3\Pi_2 - X^1\Sigma^+$ -Übergang gehören oder nicht, dazu wird hier nicht Stellung genommen.

Es sei nochmals erwähnt, daß drei oder vier Bandenkonstanten (B, D, H, \dots) nicht ausreichen, um die Wellenzahlen der Linien mit höherem J -Wert ($J=4$) korrekt berechnen zu können.

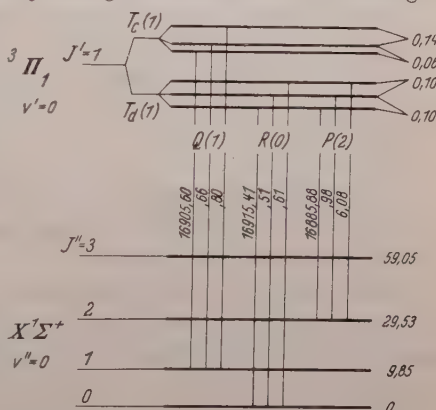


Fig. 2. Hfs-Niveauschema für die $Q(1)$, $R(0)$ und $P(2)$ -Linien des $(0-0)$, $^3\Pi_1 - X^1\Sigma^+$ -Überganges. Die A -Verdopplung ist im Vergleich zur Hf-Aufspaltung übertrieben groß gezeichnet

Die zu den ${}^1I - X {}^1\Sigma^+$ - und ${}^3I_0 - X {}^1\Sigma^+$ -Übergängen gehörenden Bandenlinien zeigen keine Hyperfeinstruktur. Eine Hfs ist nur bei der ${}^3I_1 - X {}^1\Sigma^+$ -Bande nachzuweisen.

Nur die ersten Linien der drei Zweige, d.h. $R(0)$, $Q(1)$ und $P(2)$ des $(0-0)$, ${}^3I_1 - X {}^1\Sigma^+$ -Bandes sind in drei Hfs-Komponente aufgespalte (Fig. 2). Die Abstände zwischen den Komponenten sind für $R(0)$ und $P(2)$ $0,10 \text{ cm}^{-1}$ und für $Q(1)$ $0,06$ und $0,14 \text{ cm}^{-1}$. Bei höheren J -Werten konnten die Hfs nicht weiter verfolgt werden, sondern die Linien treten nur ein wenig verbreitert auf, wobei die Breite schnell mit dem steigenden J -Wert abnimmt. Die Meßgenauigkeit ist $\pm 0,005 \text{ cm}^{-1}$. Infolge der schwachen Absorption der $(1-1)$ -, $(1-0)$ - und $(2-2)$ -Banden kann keine bestimmte Entscheidung darüber getroffen werden, wie sich die Hfs bei den verschiedenen Schwingungsübergängen verhält. Es scheint aber als ob eine dem $(0-0)$ -Bande analoge Verbreiterung der Linien auch bei den $(1-1)$ -, $(1-0)$ - und $(2-2)$ -Banden vorkommt.

Diskussion

Da Indium nur einen stabilen Isotop (113) besitzt, liegt es nahe, zur Erklärung der Hfs des InH diese als einen Effekt des magnetischen Kernmomentes ($\mu = +5,486$ für In) anzunehmen.

Bei zweiatomigen Molekülen mit $A \neq 0$, wie dieses bei InH und BiH tatsächlich der Fall ist, ist für die Hfs eine Wechselwirkung zwischen jedem der beiden Kernmagneten und dem Magnetfeld der Elektronenhülle hauptsächlich verantwortlich zu machen.

In Analogie mit der Hfs der Atomspektren ist die Anzahl der Hfs-Komponente in den $T_a(J)$ - und $T_c(J)$ -Termen durch Einstellungsmöglichkeiten zwischen \vec{I} und \vec{J} bestimmt.

Mit $J=1$ und $I=9/2$ sind die ersten Rotationstermen, $T_a(1)$ und $T_c(1)$, in voller Übereinstimmung mit den Beobachtungen, in drei Hf-Komponente aufgespalte.

Für die höheren Rotationsniveaus $J=2, 3, \dots$ muß es $5, 7, \dots$ bis 10 Komponente geben, die aber wegen der mit dem steigenden J -Wert abnehmenden Aufspaltung nicht mehr nachweisbar sind. Hfs der höheren Linien können nur noch als eine Verbreiterung der Linien wahrgenommen werden.

Die formelmäßige Angabe der Größe der magnetischen Wechselwirkungsenergien W ist von R.A. FROSC und H.M. FOLEY [7], [8] für HUNDS Fall a und b gegeben. Für HUNDS Fall a_β erhält man

$$W = A \cdot \frac{F(F+1) - J(J+1) - I(I+1)}{J(J+1)}, \quad (1)$$

wobei $F = J + I, J + I - 1, \dots, I - J$

$$A = \frac{1}{2} [aA + (b+c) \Sigma] \Omega \quad c \ll b \gg a \quad b \sim \psi^2(0) \sim Z^3$$

$\psi(0)$ = Wellenfunktion eines Elektrons am Kernort,

Z = Kernladungszahl, ($Z=49$ für Indium).

Aus dieser Darstellung lassen sich bereits verschiedene Schlüsse (Tabelle 4) für die $^1\Pi$, $^3\Pi_0$ und $^3\Pi_1$ -Zustände ziehen.

Bemerkenswert ist, daß die theoretische Erwartung nur bei $^3\Pi_0$ mit der Beobachtung im Einklang steht, d.h. $A=0$.

Für $^1\Pi$ und $^3\Pi_1$ sollte die Hfs-Aufspaltung gemäß der Theorie in beiden Zuständen gleich groß sein, eine Behauptung, welche durch die Erfahrung nicht bestätigt wird; die Hfs wird nur in $^3\Pi_1$ beobachtet. Es scheint als ob in der Gl. (1)

A und Σ im Gegensatz zu Ω

nicht definiert sind. Die Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment läßt sich vielleicht erklären, wenn man bedenkt, daß der hier vorausgesetzte

HUNDS-Fall a mit den gut definierten A und Σ als ein idealisierter Grenzfall streng genommen nicht existiert, sondern daß vielmehr der Fall c oder ein Übergangsfall zwischen den Fällen a und c vorliegt. Die große Multiplettaufspaltung (645 cm^{-1}) spricht gleichfalls zugunsten des Falles c .

Da keine theoretischen Ausdrücke für W in HUNDS Fall c zugänglich sind, sei zur Zeit vorläufig konstatiert, daß der resultierende Spinvektor \vec{S} eine sehr wichtige Rolle spielt und offenbar in irgendeiner Weise auf die Konstante b wirkt. Daß die Hfs-Aufspaltung in den $T_d(1)$ - und $T_c(1)$ -Termen verschieden groß ist, kann wahrscheinlich als ein Effekt der A -Verdopplung gedeutet werden.

Das Molekülspektrum des Indiumdeutrids ist gegenwärtig Gegenstand einer Untersuchung.

Herrn Professor Dr. ERK HULTHÉN, der die Anregung zu dieser Untersuchung gegeben und mir mit wertvollen Ratschlägen beigestanden hat, spreche ich meinen besten Dank aus. Auch Herrn Dozent Dr. BENGT KLEMAN danke ich für seine stete Hilfsbereitschaft.

Literatur

- [1] HULTHÉN, E., u. H. NEUHAUS: Ark. Fysik **8**, 343 (1954). — [2] HULTHÉN, E., and H. NEUHAUS: Phys. Rev. **102**, 1415 (1956). — [3] KRANTZ, B.-Å., u. N. ÅSLUND: Ark. Fysik **11**, 453 (1957). — [4] PETTERSSON, A.V.: Ark. Fysik **10**, 109 (1955). — [5] GRUNDSTRÖM, B.: Z. Physik **113**, 721 (1939). — [6] KLEMAN, B.: Diss. Stockholm 1953. — [7] TOWNES, C.H., and A.L. SCHAWLOW: Microwave Spectroscopy. New York: McGraw-Hill Publ. 1955. — [8] FROSCH, R.A., and H.M. FOLEY: Phys. Rev. **83**, 1337 (1952).

Aus dem Institut für Experimentelle und Angewandte Physik
der Universität Tübingen

Emissionsmikroskopie mit Sekundärelektronen (15 keV-Primärelektronen) *

Von

W. BAYH

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 7. September 1957)

Das für ionenausgelöste Elektronen gebaute Oberflächenmikroskop wird so umgestaltet, daß anstelle der Ionenquelle eine Elektronenquelle tritt. Mit 15 keV Energie auf die Metalloberfläche einfallende Elektronen lösen Sekundärelektronen aus. Mittels eines elektrostatischen Immersionsobjektives mit hoher Feldstärke vor der Kathode und scharfer Aperturbegrenzung in der Brennebene des Objektives werden Bilder von Metalloberflächen erzeugt. Es wird eine Auflösungsgrenze von 1000 Å erreicht. Die mit Sekundärelektronen bei einem Vakuum von 10^{-4} Torr aufgenommenen Bilder stehen denen mit ionenausgelösten Elektronen in der Plastik nicht nach, jedoch erreichen sie hinsichtlich der Auflösung und der Materialdifferenzierung nicht deren volle Qualität.

In den letzten Jahren wurde von G. MÖLLENSTEDT u. Mitarb.^{1,2} ein Verfahren zur direkten Sichtbarmachung von Metalloberflächen entwickelt. Dabei werden aus dem als Kathode eines elektrostatischen Immersionsobjektives dienenden Objekt durch Ionenstoß Elektronen ausgelöst und mittels dieser Elektronen die Oberfläche abgebildet. Wegen des seitlichen Ioneneinschusses zeichnet sich dieses Verfahren durch gute Bildplastik aus. Auch werden Stoffe verschiedener Zusammensetzung infolge ihres unterschiedlichen Emissionsvermögens differenziert wiedergegeben, sofern das Objekt auf 150° C aufgeheizt wird³. Bei scharfer Aperturbegrenzung in der Brennebene des Objektives konnte ein Auflösungsvermögen von 500 Å gemessen werden. Es läßt sich jedoch bei dieser Untersuchungsmethode nicht ganz vermeiden, daß das Objekt bei sehr starkem Ionenbeschuß durch Kathodenzerstäubung angegriffen wird. Deshalb liegt es nahe, zur Elektronenauslösung aus dem Objekt statt der Ionen die wesentlich leichteren Elektronen zu verwenden, d.h. die Abbildung mit Sekundärelektronen durchzuführen.

* Langsame Primär-Elektronen siehe: LAN YU HUANG, Z. Physik **149**, 225 (1957). W. HUBIG: Optik (im Druck). — BARTZ, G., u. G. WEISSENBERG: Naturwiss. **44**, 229 (1957).

¹ MÖLLENSTEDT, G., u. H. DÜKER: Optik **10**, 192 (1953).

² MÖLLENSTEDT, G., u. M. KELLER: Radex-Rdsch. **4/5**, 153 (1956).

³ MÖLLENSTEDT, G., u. W. HUBIG: Optik **11**, 528 (1954).

Abbildungsversuche mit Sekundärelektronen wurden erstmals von V. K. ZWORYKIN⁴ und E. MECHTER⁵ unternommen. Es wurde jedoch nur ein geringes Auflösungsvermögen von einigen Zehntel Millimetern erreicht.

Die wirklich erzielbare Auflösungsgrenze kann nach der Recknagel-schen Formel⁶: $d = n \cdot \frac{\epsilon}{E}$ abgeschätzt werden. In dieser Gleichung stellt n einen konstanten Faktor dar, dessen Wert etwa 1,2 beträgt. ϵ ist das Volt-Äquivalent der wahrscheinlichsten Austrittsenergie der Elektronen, das nach R. KOLLATH⁷ bei den meisten Metallen zwischen 1,4 und 2,2 V liegt. E bedeutet die elektrische Feldstärke an der Kathode des Immersionsobjektives und hängt vom Elektrodenabstand und von der Beschleunigungsspannung ab. Mit $\epsilon = 2$ V, $E = 45$ kV/cm und $n = 1,2$ erhält man eine Auflösungsgrenze von etwa 5000 Å. Bei Bildwandlerversuchen mit Sekundärelektronen gelang es W. HUBIG⁸ diese Auflösung zu erreichen. Jedoch sind auch diese Bilder noch nicht optimal, da keine Aperturbegrenzung vorgenommen wurde.

Nach den Berechnungen von H. BOERSCH⁹ ist es möglich, durch Verwendung einer Blende von geeignetem Durchmesser die Apertur so stark zu beschneiden, daß die nach A. RECKNAGEL erreichbare Auflösung um den Faktor 10 verbessert wird. Aus Erfahrungen mit dem Oberflächenmikroskop für ionenausgelöste Elektronen ist durch scharfe Aperturbeschneidung in der Brennebene des Objektives eine Verbesserung der Auflösung um den Faktor 5 zu erwarten. Für den optimalen Blendendurchmesser liefert die Rechnung den Wert von 10 μ . Dieser Wert wurde durch das Experiment bestätigt.

Um hochauflösende Abbildungen mit Sekundärelektronen zu erzielen, brauchte nur die elektrische Schaltung des Oberflächenmikroskops für ionenausgelöste Elektronen geändert zu werden. Die neue Schaltungsanordnung sowie der Aufbau des Abbildungssystems ist aus Fig. 1 ersichtlich. Als Elektronenquelle dient eine Steigerwald-Kathode¹⁰. Das Strahlerzeugungssystem wird an Stelle der Ionenquelle seitlich am Objektivgehäuse angebracht. Die Kathode der Quelle liegt an einer Spannung von -60 kV, die Anode an -45 kV. Demnach treffen die Elektronen mit einer Energie von 15 keV auf das Objekt. Der Einschubwinkel beträgt 20°.

⁴ ZWORYKIN, V. K.: J. Franklin Inst. **215**, 554 (1933).

⁵ MECHTER, E.: Rev. Sci. Instrum. **9**, 12 (1938).

⁶ RECKNAGEL, A.: Z. Physik **117**, 689 (1941).

⁷ KOLLATH, R.: Ann. Physik **1**, 357 (1947).

⁸ HUBIG, W.: Diss. Tübingen 1956.

⁹ BOERSCH, H.: Z. techn. Phys. **23**, 129 (1942).

¹⁰ STEIGERWALD, K. H.: Optik **5**, 469 (1949).

In den Fig. 2a—d wurden nacheinander Blenden von 100, 30, 15 und $8\ \mu$ Durchmesser verwendet. Fig. 2d weist die beste Bildqualität auf. Es ist jedoch schwierig, mit einer Blende von solch kleinem Durchmesser

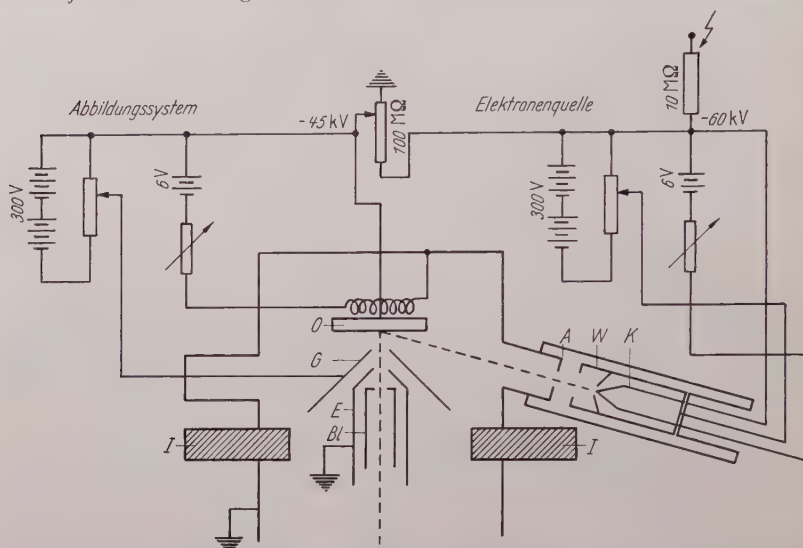


Fig. 1. Elektrische Schaltung des Immersionsobjektives zur Erzeugung von Bildern mit Sekundärelektronen. *O* Objekt, *G* Steuerelektrode, *E* Anode des Objektives, *Bl* Aperturblende, *I* Isolator (Vinidur), *A* Anode der Elektronenquelle, *W* Wehnelt-Zylinder, *K* Kathode

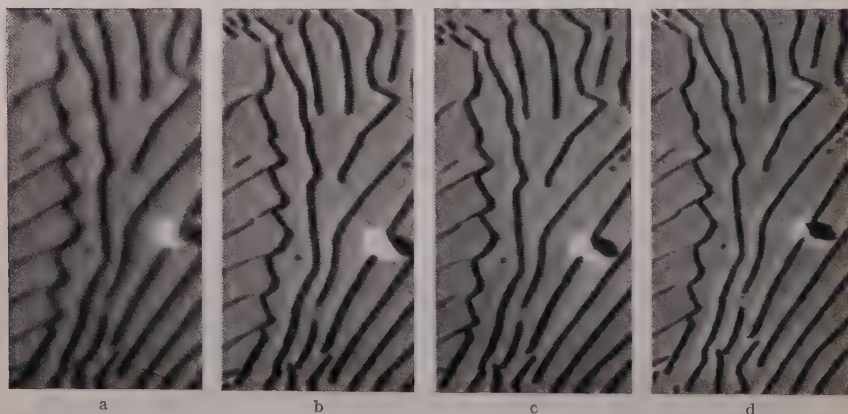


Fig. 2a—d. Schärfe der mit Sekundärelektronen aufgenommenen Bilder als Funktion von der Aperturbegrenzung. Durchmesser der Blende in der Brennebene: a) $100\ \mu$, b) $30\ \mu$, c) $15\ \mu$, d) $8\ \mu$.
 $V_{el} = 850$, $V_{ges} = 2300$

zu arbeiten, weil infolge der starken Belastung die Blende weißglühend wird und daher die Photoplatte durch Licht geschwärzt wird. Aus diesem Grunde wurde die Auflösungsbestimmung mit einer $15\ \mu$ -Blende durch-

geführt. Als Objekt wurde ein martensitisches Stahlgefüge verwendet, welches eine Anzahl von gutemittierenden Punkten enthielt.

Aus den Fig. 3a und 3b kann ein Auflösungsvermögen zwischen 1000 und 1500 Å ermittelt werden. Diese Auflösung wird jedoch nur senkrecht

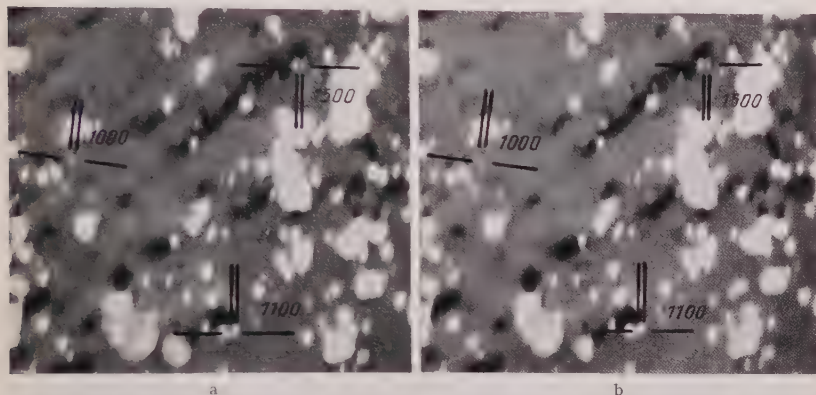


Fig. 3a u. b. Doppelaufnahme von einer martensitischen Stahloberfläche zur Bestimmung der Grenzauflösung. $V_{el} = 850$, $V_{ges} = 5500$

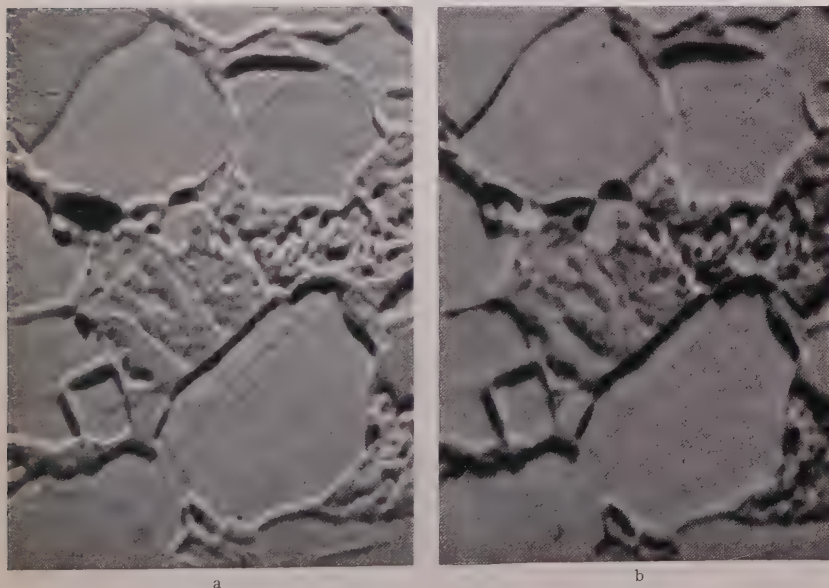


Fig. 4a u. b. a Mit ionenausgelösten Elektronen und b mit Sekundärelektronen aufgenommene Bilder. $V_{el} = 700$, $V_{ges} = 3600$

zur Einschubrichtung gefunden, da alle mittels Sekundärelektronen erzeugten Bilder einen Astigmatismus in der Einschubrichtung aufweisen.

Die Ursache dieses Bildfehlers konnte bisher nicht geklärt werden. Sie ist jedoch sicher nicht auf einen Fehler im Abbildungssystem zurückzuführen.

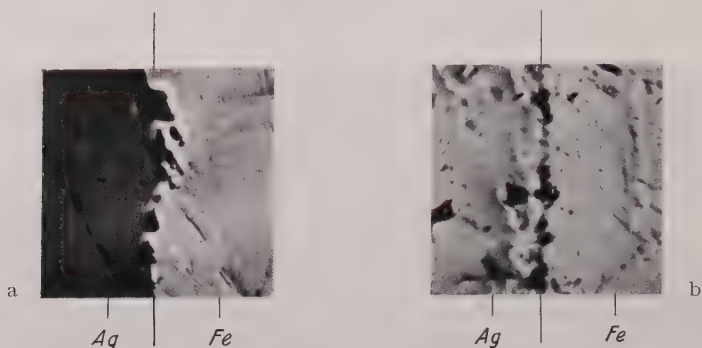


Fig. 5 a u. b. Vergleich der Materialdifferenzierung bei verschiedener Auslösung der Elektronen: a Ionenauslösung, 35 keV Ionenenergie; b Elektronenauslösung, 15 keV Primärenergie. $V_{el} = 700$, $V_{ges} = 1500$

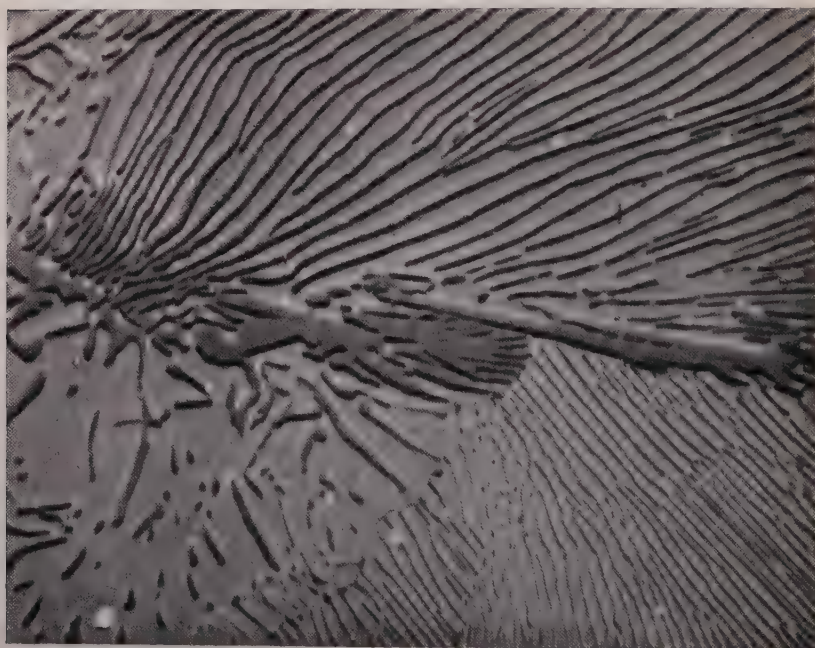


Fig. 6. Mit Sekundärelektronen aufgenommene perlitische Stahloberfläche. $V_{el} = 600$, $V_{ges} = 1800$. Belichtungszeit: 2 sec

ren. Es besteht die Möglichkeit, daß der Astigmatismus durch eine Raumladung verursacht wird, die von den Primärelektronen sowie von den elastisch und unelastisch gestreuten Elektronen hervorgerufen wird.

Grundsätzlich ließe sich aber dieser Astigmatismus mit einem Stigmator beseitigen.

Aus der Qualität der Bilder kann entnommen werden, daß die elastisch gestreuten Elektronen keinen Einfluß auf die Abbildung haben. Die Energiedifferenz zwischen Sekundärelektronen und elastisch gestreuten Elektronen beträgt 15 keV, deshalb werden die elastisch gestreuten Elektronen durch die feine Aperturbegrenzung ausgeblendet.

Von besonderem Interesse ist ein Vergleich von Bildern, die mit Sekundärelektronen und ionenausgelösten Elektronen hergestellt wurden. Die Fig. 4a und 4d demonstrieren den Unterschied. Die ionenausgelösten Elektronenbilder sind besser als die Sekundärelektronenbilder.

Für die Anwendung der Sekundärelektronen zur Abbildung spricht die weit geringere Beanspruchung der untersuchten Oberfläche. Dagegen zeigt aber die Erfahrung, daß mit Sekundärelektronen die Materialdifferenzierung weniger gut ist. Dies wird in den Fig. 5a und 5b, die bei einem Vakuum von 10^{-4} Torr aufgenommen wurden, besonders deutlich. Zur Vermeidung von Kohlenstoffniederschlägen befand sich das Objekt auf einer Temperatur von 150°C . Diese Beobachtung wird durch die geringen Unterschiede in den Sekundär-Emissionsfaktoren bei der hier verwendeten Primärenergie von 15 keV verständlich.

Daß trotzdem auch mit Sekundärelektronen, die von 15 kV-Primärelektronen ausgelöst wurden, ein plastisches Bild von hoher Auflösung und mit einer gewissen Materialdifferenzierung erzielt werden kann, demonstriert Fig. 6, die eine perlitische Stahloberfläche wiedergibt.

Herrn Professor Dr. G. MÖLLENSTEDT verdanke ich Anregung und Förderung dieser Arbeit.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die freundliche Unterstützung. Ferner wurde die Arbeit mit Mitteln durchgeführt, die dem Inhaber des Lehrstuhls für Experimentelle und Angewandte Physik von der Research Corporation, New York, zur Verfügung gestellt wurden.

Aus dem Institut für Experimentelle und Angewandte Physik
der Universität Tübingen

Ionenbilder in Durchstrahlung

Von

G. MÖLLENSTEDT, H. SEILER und G. JUNGER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 19. August 1957)

Die bisherigen, den Elektronenmikroskopen nachgebildeten Ionenmikroskope sind wegen der selbst in dünnsten Folien eintretenden starken Streuabsorption und der großen chromatischen Verluste der Ionen nicht in der Lage, Bilder von durchstrahlten Objekten zu erzeugen.

Folgender Weg erlaubt dagegen, Ionenbilder in Durchstrahlung zu erhalten: In Analogie zu dem von G. MÖLLENSTEDT und L. Y. HUANG entwickelten Röntgen-Bildwandler-Mikroskop wird das auf eine dünne metallisierte Kohlenstoff-Folie aufgelegte Objekt mit Ionen durchstrahlt. Die auf der Rückseite ausgelösten Elektronen werden mittels eines Immersions-Objektives abgebildet.

Erste Lithium-Bilder in Durchstrahlung von Na-Dodezylsulfat und Muskovit-Einkristallen werden gezeigt und die Ähnlichkeit bzw. der Unterschied zu Elektronenbildern infolge echter Absorption und chromatischer Verluste bei Ionen und Streuabsorption bei Elektronen deutlich gemacht.

Ein Ionenstrahl hat, verglichen mit einem Elektronenbündel gleicher Volt-Energie, eine um den Faktor $\sqrt{\frac{m_e}{m_i}}$ kleinere de Broglie-Wellenlänge, wenn m_e und m_i die Masse des Elektrons bzw. des Ions bedeuten. Diese Tatsache ließ die Idee aufkommen, statt der Elektronen im elektrostatischen Elektronenmikroskop nach elektrischer Umpolung positive Ionen zur Bilderzeugung zu verwenden, um infolge der Verringerung des Beugungsscheibchens $d_B = \lambda/\vartheta$ das Auflösungsvermögen zu erhöhen. Die Experimente¹⁻⁵ aber ergaben, daß es mit den bisherigen, den Elektronenmikroskopen nachgebildeten Ionenmikroskopen nicht möglich ist, das Auflösungsvermögen der Elektronenmikroskope zu erreichen, geschweige denn zu überbieten. Insbesondere muß darauf hingewiesen werden, daß bisher kein brauchbares Ionenbild bekanntgeworden ist, das mit Ionen aufgenommen wurde, die ein dünnes Objekt durchstrahlt haben. Der Grund dafür ist klar: Sowohl der elastische als auch der unelastische Streuquerschnitt der Ionen gegenüber den Atomen des

¹ BOERSCH, H.: Naturwiss. **30**, 111 (1942).

² BOERSCH, H.: Experientia [Basel] **3**, 12 (1947).

³ CHANSON, P., u. C. MAGNAN: C. R. Acad. Sci. Paris **223**, 1436 (1951).

⁴ CHANSON, P., u. C. MAGNAN: C. R. Acad. Sci. Paris **238**, 1797 (1954).

⁵ GAUZIT, M.: Ann. de Phys., Ser. XII **9**, 683 (1954).

Objektes ist wesentlich größer als der Streuquerschnitt von Elektronen gleicher Energie. Das hat zur Folge, daß Streuabsorption und chromatische Verluste, welche die Ionen beim Durchtritt durch die Objekte erleiden, so groß sind, daß eine Abbildung mittels einer elektrostatischen Linse sehr intensitätsschwach und völlig unscharf und daher praktisch unmöglich ist.

Um aus diesen Schwierigkeiten herauszukommen und eine Ionenmikroskopie in Durchstrahlung zu ermöglichen, schlugen die Verfasser folgenden Weg ein: Eine dünne, plangespannte und möglichst strukturlose, mit 500 \AA Silber bedampfte Kohlenstoff-Folie nach BRADLEY⁶ oder

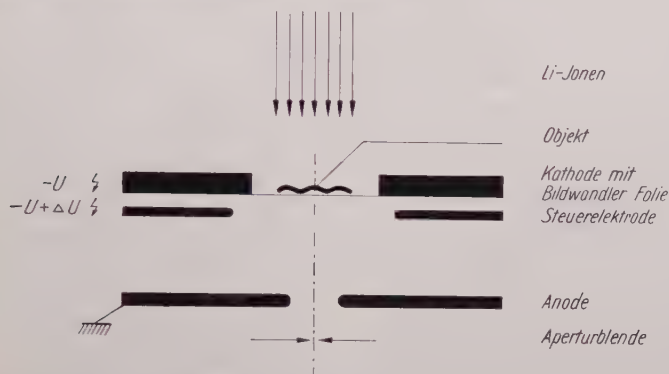


Fig. 1. Versuchsanordnung zur Erzeugung von Ionenbildern in Durchstrahlung. Die Bildwandlerfolie besteht aus einer 500 \AA dicken Kohlenstoff- oder Kollodiumfolie, die auf der unteren Seite mit 500 \AA Silber bedampft ist

Kollodium-Folie dient als Kathode eines 40 kV -Immersions-Objektives. Das abzubildende Objekt wird möglichst nahe an die obere Oberfläche der Kohlenstoff-Folie gebracht (s. Fig. 1) und in Analogie zu dem von G. MÖLLENSTEDT und L. Y. HUANG⁷ entwickelten Röntgen-Bildwandler-Mikroskop statt mit Röntgenstrahlen mit Lithium-Ionen von 70 kV durchstrahlt.

Dann werden je nach Absorption und chromatischen Verlusten im Objekt mehr oder weniger Elektronen auf der Rückseite der Silberfolie infolge des Durchtritts von Ionen durch die Oberfläche ausgelöst. Das Immersions-Objektiv erzeugt dann mit den so ausgelösten Elektronen eine Abbildung des Objektes. Die Auflösung dieses Bildes ist naturgemäß durch die Leistungsfähigkeit des Immersions-Objektives begrenzt. Jedoch ist die Auflösungsgrenze aller Voraussicht nach (eine exakte Abschätzung ist noch nicht möglich, da die Energiebreite der auf der

⁶ BRADLEY, D.E.: Brit. J. Appl. Phys. **5**, 65 (1954).

⁷ MÖLLENSTEDT, G., u. L. Y. HUANG: Symposium on X-Ray Microscopy and Microradiography, Cambridge (England) 1956 ferner Z. Physik **149**, 225—253 (1957).

Rückseite ausgelösten Elektronen noch nicht bestimmt wurde) von der Größenordnung einiger hundert Å.

Diese Voraussage ist gut begründet, da die als Kathode dienende Folie nicht das Objekt ist, wie bei den BEHNESCHEN⁸ Durchstrahlungsversuchen mit Elektronen oder wie bei einigen Durchstrahlungsbildwandler-Aufnahmen mit Ionen von W. HUBIG⁹, sondern nur als elektronenemittierende Folie für die durch das Objekt hindurchgegangenen

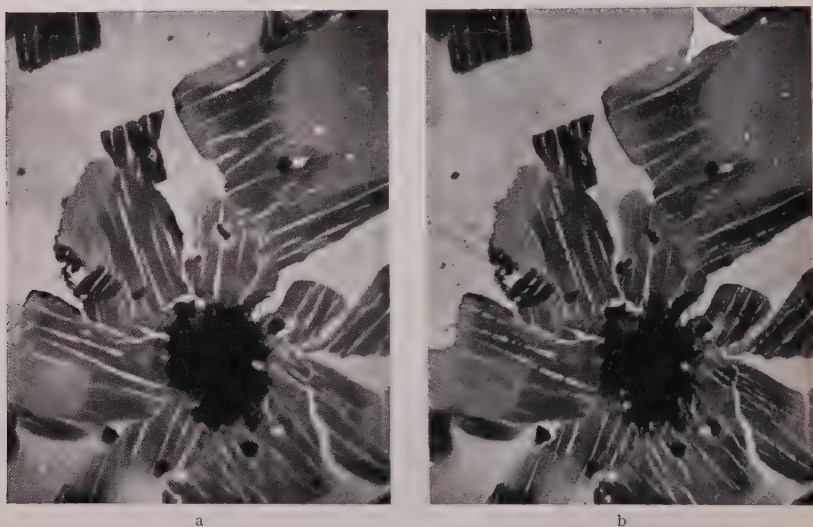


Fig. 2 a u. b. a Mit der in Fig. 1 wiedergegebenen Versuchsanordnung aufgenommenes Ionenbild in Durchstrahlung. Objekt: Na-Dodezylsulfat-Plättchen. $V=250$. b Dasselbe Objekt im Elektronenmikroskop aufgenommen. $V=250$

Ionen dient. Wäre das Objekt selbst Kathode, so würde das Auflösungsvermögen nach A. RECKNAGEL¹⁰ infolge der Objekt-Höhenunterschiede und Rauigkeiten empfindlich herabgesetzt und etwa auf das Dreifache der Rauigkeit begrenzt.

Die Fig. 2a demonstriert ein nach diesem Verfahren aufgenommenes Ionenbild in Durchstrahlung. Als Objekt dienten Na-Dodezylsulfat-Plättchen, die aus einer alkoholischen Lösung auf der Oberfläche der als Bildwandlerfolie dienenden Kohlenstoff-Silber-Schicht eingetrocknet wurden. Die elektronenoptische Vergrößerung des Immersions-Objektives betrug 80.

⁸ BEHNE, R.: Ann. Phys. **26**, 385 (1936).

⁹ HUBIG, W.: Durchstrahlungs-Bildwandler für Korpuskularstrahlen. Optik **1958** (im Druck).

¹⁰ RECKNAGEL, A.: Z. Physik **120**, 331 (1943).

In aller Deutlichkeit erkennt man im Ionenbild jetzt die Durchdringung des Objektes durch die 70 kV-Ionen. Gegenüber den bisherigen

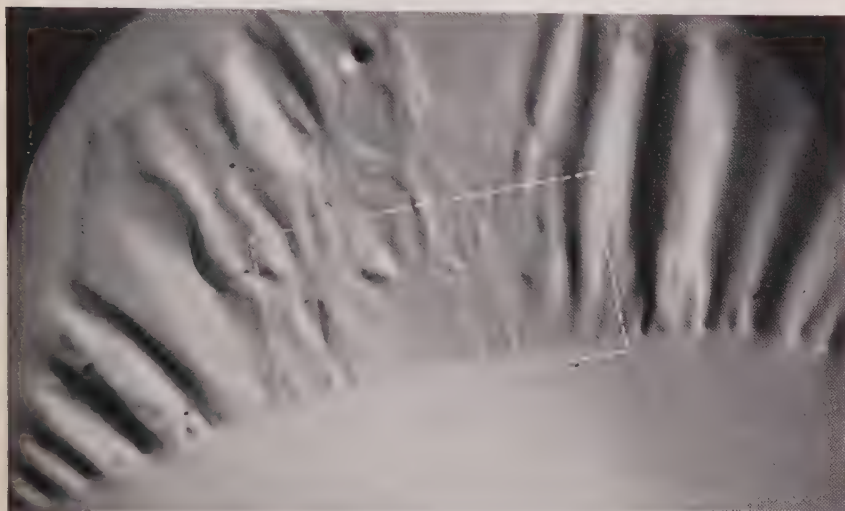


Fig. 3. Durchstrahlungs-Ionenbild einer 800 Å dicken Muskovit-Einkristall-Lamelle. $V=150$

Ionenbildern, die als Information nur schwarz oder weiß enthielten, zeigen sich jetzt Schwärzungsstufen.

Die Ähnlichkeit dieses Ionenbildes mit einem 40 kV-Elektronenbild (Fig. 2b) ist überraschend, da für die Entstehung des Kontrastes

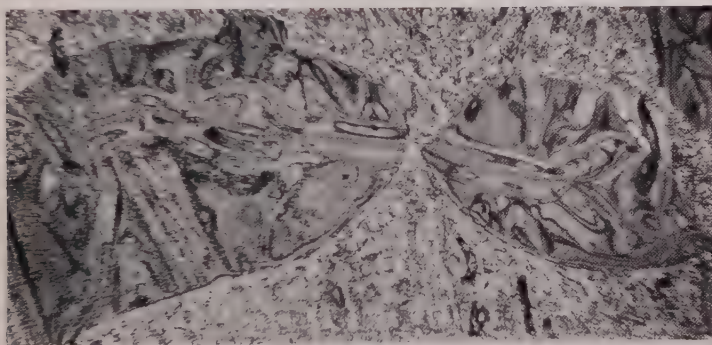


Fig. 4. Im Elektronenbild des in Fig. 3 gestrichelt eingezeichneten Gebietes treten Bragg-Reflexe auf. $V=300$

beim Ionenbild die echte Absorption (das Steckenbleiben im Objekt) und die Energieabgabe im Objekt maßgebend sind, während für das Elektronenbild die Streuabsorption entscheidend ist.

Der Unterschied zwischen den beiden Verfahren kommt aber in hervorragender Weise zum Vorschein, wenn auf die Bildwandlerfolie eine dünne Einkristall-Glimmer-Lamelle von etwa 800 Å Dicke gelegt wird. Während im Elektronenmikroskop das bekannte Bild der Bragg-Reflexe (Fig. 4) zu erkennen ist, zeichnen die Ionen ein plastisches Bild der Lamelle (Fig. 3).

Vergrößerung und Auflösung der Ionenbilder in Durchstrahlung sollen in weiteren Experimenten gesteigert werden. Wenn auch das neue Verfahren in der Auflösung die besten Elektronenmikroskope nicht erreichen kann, so erhält man doch einen vertieften Einblick in die Elementarvorgänge der Wechselwirkung zwischen Ionenstrahlen und Materie, besonders dann, wenn Art und Energie der Ionen und die Ordnungszahl der Atome der Objekte variiert werden.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für freundliche Unterstützung. Ferner wurde die Arbeit mit Mitteln durchgeführt, die dem Inhaber des Lehrstuhls von der Research Corporation, New York, zur Verfügung gestellt wurden.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Münster

Obere Curie-Temperatur und Domänenstruktur in verschiedenen Gebieten von Seignettesalz-Kristallen

Von

HORST E. MÜSER und HORST FLUNKERT

Mit 10 Figuren im Text

(Eingegangen am 27. Juli 1957)

Es wurden Seignettesalzkristalle durch Abkühlen einer ruhenden gesättigten Lösung gezüchtet. Der Kristallteil, der durch alle ehemaligen äußeren (001)-Flächen gebildet wird (Gebiet I genannt), besitzt fast nur b-Domänen, der gesamte Rest des Kristalls (Gebiet II) fast nur c-Domänen. Der Curie-Punkt des Gebietes I liegt um $0,47 \pm 0,05^\circ$ höher als der Curie-Punkt des Gebietes II. Die relative freie Dielektrizitätskonstante in der ferroelektrischen Richtung steigt am Curie-Punkt in beiden Gebieten auf 15000.

1. Einleitung

In einer früheren Arbeit wurde experimentell bestätigt, daß sich aus thermodynamischen Beziehungen alle mit der ferroelektrischen a -Achse des Seignettesalzes verknüpften elektromechanischen Stoffgrößen berechnen lassen, wenn man nur eine „anomale“ und einige „wahre“ Stoffgrößen kennt¹. Sofern man keine extremen Anforderungen an die Genauigkeit stellt und die Randbedingungen hinreichend genau beachtet, lassen sich für die Anwendung der thermodynamischen Verknüpfungen zwischen den Stoffgrößen auch Messungen an verschiedenen Kristall-exemplaren miteinander kombinieren. Bei größerer Meßgenauigkeit erhält man jedoch von Probe zu Probe systematische Abweichungen, deren nähere Untersuchung das Ziel dieser Arbeit ist.

Da es den Anschein hatte, daß diese systematischen Abweichungen sich in erster Näherung als Parallelverschiebung der Curie-Weißschen Geraden darstellen lassen, die z.B. für die reziproke Dielektrizitätskonstante in Richtung der a -Achse gelten, liegt es nahe, zur Ermittlung der gesuchten Unterschiede am Curie-Punkt zu messen, weil sie sich dort relativ am stärksten bemerkbar machen. Da die Gültigkeit der thermodynamischen Verknüpfungen gesichert ist, genügt es, sich auf die Messung einer Stoffgröße mit Curie-Weißscher Temperaturabhängigkeit zu beschränken. Hierfür bietet sich die freie Dielektrizitätskonstante an, die sich durch eine einfache Kapazitätsmessung bequem ermitteln läßt.

¹ MÜSER, H.E.: Z. Physik **145**, 621—638 (1956).

2. Die Züchtung der Kristalle

Die Kristalle wurden aus gesättigter Lösung gezüchtet. Ausgangssubstanz war Seignettesalz (p.a.) der Firma Merck mit weniger als 0,03 % Fremdstoffen. Zur Bestimmung der Sättigungstemperatur wurde ein kleiner Kristall in die Lösung gehängt, deren Temperatur auf $\pm 1/100^\circ$ konstant gehalten wurde. Bei Untersättigung sinkt vom eingehängten Kristall aus eine Schliere größerer Konzentration zu Boden, bei Übersättigung steigt eine Schliere verringerter Konzentration vom Kristall

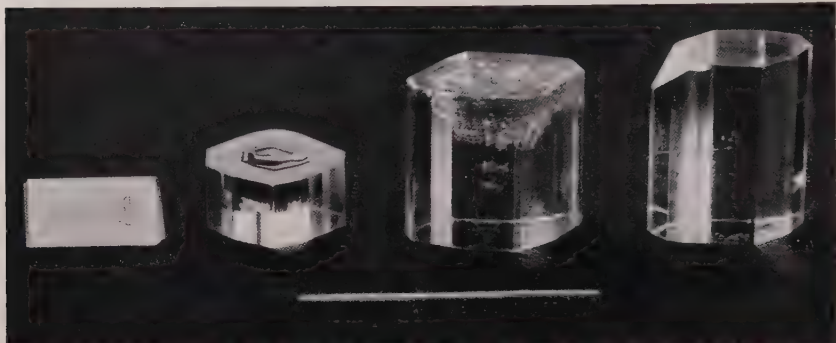


Fig. 1. Seignettesalzkristalle, bei denen die Keime während des Wachstums in der Lösung verschieden orientiert waren. Von links nach rechts: 1 Plättchen, das zwischen zwei Glasplatten gezüchtet wurde. (100)-Fläche oben, b -Achse horizontal. Das Gebiet II hebt sich durch eine stärker ausgeprägte Riefung deutlich vom Gebiet I ab. 2 Kristall, der mit vertikaler c -Achse vom Boden des Gefäßes aus gezüchtet wurde. Die im Bild sichtbare (001)-Fläche befand sich während der Züchtung auf dem Boden des Gefäßes; sie enthält eine Vertiefung, die infolge des Wachstumsdruckes entstanden ist. Die gegenüberliegende (001)-Fläche ist glatt. 3 Kristall, der mit vertikaler c -Achse in der Lösung hängend gezüchtet wurde. Die obere Hälfte des Gebietes I, in die der Aufhängedraht eingewachsen ist, zeigt eine deutliche Trübung, die man als die Hälfte einer Sanduhr bezeichnen kann. 4 Kristall, der mit vertikaler b -Achse in der Lösung hängend gezüchtet wurde. Als einzige Störung kann man schwach den Kristallkeim und den eingewachsenen Aufhängedraht erkennen. Zwischen den Gebieten I und II ist kein Unterschied zu sehen. Das vor den Kristallen liegende Streichholz ermöglicht einen Größenvergleich

aus nach oben. Die Temperatur wurde so lange geändert, bis die Schliere gerade verschwand. Auf diese Weise konnte die Sättigungstemperatur auf mindestens $1/10^\circ$ genau eingeregelt werden.

Nachdem der in üblicher Weise präparierte Keim in die Lösung gebracht worden war, wurde die Temperatur so abgesenkt, daß die lineare Wachstumsgeschwindigkeit etwa 3 mm/Tag betrug. Wenn die Linearabmessungen der Kristalle etwa 3 cm erreicht hatten, wurde die Züchtung beendet und ein neuer Keim in die Lösung gebracht. Die Ausgangstemperatur bei Beginn der Züchtung des ersten Kristalls lag stets unter 38°C , die Temperatur beim Herausnehmen des letzten Kristalls stets über 16°C . Für jeden Kristall wurde die Temperatur im Verlauf des Wachstums um etwa 2° gesenkt. Die mittlere Züchtungstemperatur scheint jedoch für die Eigenschaften der erhaltenen Kristalle belanglos zu sein.

Die Keime wurden mit vertikaler *b*- oder *c*-Achse in die Lösung gehängt oder auf den Boden des Gefäßes gelegt. Teilweise wurde auch bei vertikaler *a*-Achse zwischen horizontalen, etwa 1 mm voneinander entfernten Glasplatten gezüchtet; dabei entstanden Platten, die ohne weitere Bearbeitung oder Zerschneidung ausgemessen werden konnten, weil ihre größten Flächen senkrecht zur *a*-Achse lagen. Durch die Orientierung des Keimes läßt sich die äußere Form der erhaltenen Kristalle und das Ausmaß der von außen sichtbaren Störungen beeinflussen. Die wenigsten Störungen erhielten wir bei vertikaler *b*-Achse und hängenden Kristallen. Einige der bei den verschiedenen Keimorientierungen erhaltenen Kristalle sind in Fig. 1 abgebildet. Im folgenden soll derjenige Kristallteil, der im Verlauf des Wachstums einmal eine äußere (001)-Fläche war, das Gebiet I, der gesamte Rest des Kristalls das Gebiet II genannt werden. Bei einigen Keimorientierungen und bei zu großer Wachstumsgeschwindigkeit wird das Gebiet I als „Sanduhr“ sichtbar. Die Unterschiede zwischen den Gebieten I und II, über die in den nächsten Abschnitten berichtet wird, sind unabhängig von der Züchtungsmethode.

Für die weiteren Untersuchungen wurden aus den Einkristallen mit einem feuchten Perlonfaden Platten von etwa 1 mm Dicke herausgeschnitten. Die Platten wurden dann feucht poliert, in eine schwach untersättigte Seignettesalzlösung gelegt und mit weichem Zellstoff abgetrocknet. Die Behandlung in schwach untersättigter Lösung wirkt auf die Oberflächen anscheinend ähnlich wie die Wasserhautbehandlung nach ASSELMAYER und BIENERT²; man erhält auf diese Weise sehr saubere Oberflächen, die sich auch für optische Untersuchungen eignen. Für die elektrischen Messungen wurden Silberelektroden aufgedampft, wobei die Kristallplatten insgesamt weniger als 20 min im Vakuum blieben. Auch etwa der doppelte Aufenthalt im Vakuum (bei 18° C) veränderte die Ergebnisse nicht.

3. Dielektrische Messungen

Zur Messung von ϵ , wie wir den relativen Wert der freien Dielektrizitätskonstante bezeichnen wollen, wurden die metallisierten Kristallplatten in einen abgeschlossenen Behälter gebracht, in dem Schwefelsäurelösung vom spezifischen Gewicht 1,20 für die Aufrechterhaltung einer relativen Luftfeuchtigkeit von 79% sorgte. Die Temperatur war auf $\pm 1/100^\circ$ konstant und wurde mit einer absoluten Genauigkeit von $1/10^\circ$ gemessen. Sie wurde so langsam geändert, daß sich bei jeder Messung mit Sicherheit ein thermisches Gleichgewicht eingestellt hatte. Außerdem wurde stets bei fallender Temperatur gemessen, da hierbei die Nachwirkungserscheinungen weniger stark ins Gewicht fallen als bei

² ASSELMAYER, F., u. W. BIENERT: Z. angew. Phys. 9, 253—255 (1957).

steigender Temperatur³. Die Kapazität der mit Elektroden versehenen Platten wurde an einer Meßbrücke mit Meßfeldstärken von weniger als

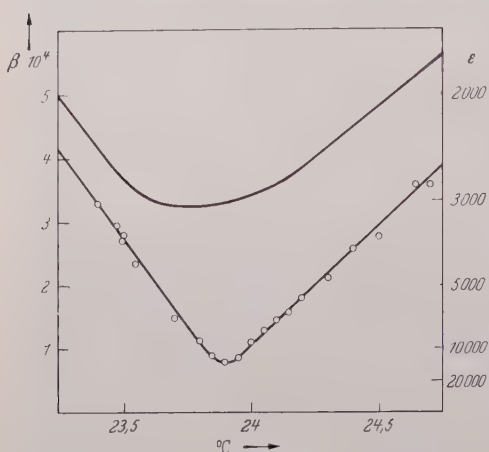


Fig. 2. Reziproke freie Dielektrizitätskonstante $\beta = 1/\epsilon$ in der Nähe der Curie-Temperatur. Die obere Kurve entspricht einer „schlechten“ Kristallplatte, die untere Kurve einer „guten“. Häufig erreicht man durch Abwaschen der Oberfläche von „schlechten“ Kristallen eine Verbesserung, d. h. die Kurven liegen bei erneuter Messung tiefer

100 V/m bei 3 kHz auf ± 10 pF genau bestimmt. Die Genauigkeit, mit der auf diese Weise ϵ ermittelt werden konnte, war im allgemeinen besser als 5%. Nur bei einzelnen sehr kleinen Kristallplatten sind größere Fehler möglich.

Zum Curie-Punkt hin fällt von beiden Seiten der reziproke Wert $\beta = 1/\epsilon$ linear mit der Temperatur ab. Am Curie-Punkt wird ein Minimum in β , entsprechend dem Maximum in ϵ , angenommen. Die Curie-Temperatur hängt von Verunreinigungen und vom Druck ab⁴. Wenn also in einem Kristall inhomogene innere Spannungen oder Verunreinigungen von örtlich wechselnder Konzentration bestehen, wird der Minimalwert von β für verschiedene Kristallgebiete bei verschiedenen Temperaturen angenommen, so daß sich statt einer Spitze eine Abrundung der β -Kurven ergibt. In Fig. 2 sind die Meßkurven für zwei Kristallplatten dargestellt. Die abgerundete Kurve kann man sich entstanden denken aus mehreren Kurven mit Spitzen bei verschiedenen Temperaturen.

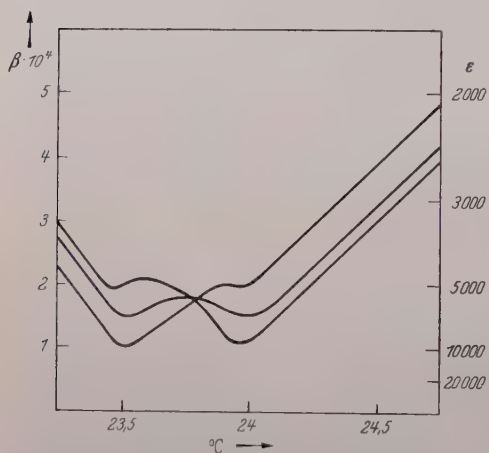


Fig. 3. Die reziproke Dielektrizitätskonstante in der Nähe des Curie-Punktes für verschiedene Kristallplatten, die alle aus demselben Einkristallblock stammen

Bei fast allen Kristallplatten zeigte sich in den Meßkurven eine Aufspaltung des Minimums in zwei diskrete Extremstellen, oder es trat neben einer deutlich ausgeprägten Spitze andeutungsweise eine weitere

³ FLUNKERT, H., u. H. E. MÜSER: Phys. Verh. 8, 111 (1957).

⁴ CADY, W. G.: Piezoelectricity. New York: McGraw Hill 1946.

Spitze auf. Beispiele für derartige Meßkurven sind in Fig. 3 dargestellt. Wir konnten nachweisen, daß die Spitze bei der höheren Temperatur zum Gebiet I, die Spitze bei der tieferen Temperatur zum Gebiet II gehört: Trennt man die Gebiete I und II durch Zerschneiden, so besitzt jedes Teilstück der Platte nur einen (oberen) Curie-Punkt ohne weitere Anomalie. In Fig. 4 ist ein derartiges Ergebnis gezeigt. In allen untersuchten Kristallblöcken lag der Curie-Punkt des Gebietes I um $0,47 \pm 0,05^\circ$ höher als der Curie-Punkt des Gebietes II. Vom einen zum anderen Kristallblock wurden Unterschiede in der absoluten Lage der beiden

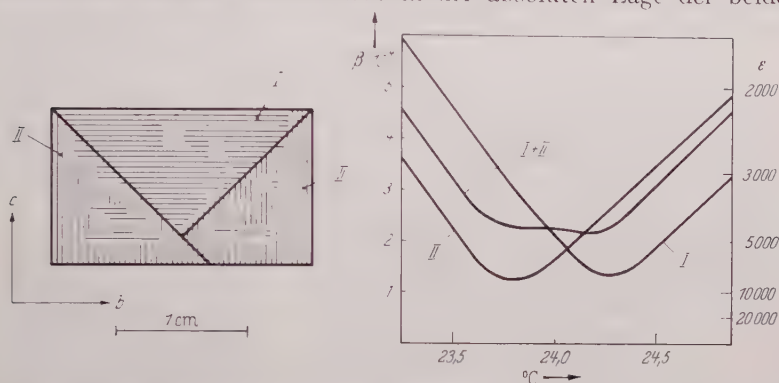


Fig. 4. Reziproke freie Dielektrizitätskonstante einer Kristallplatte, die die Gebiete I und II enthält, und die DK der Teilstücke nach der in der Skizze angedeuteten Zerschneidung. Die Schraffierung in der Skizze stellt die Domänenstruktur in den beiden Gebieten schematisch dar. (Vgl. hierzu den Text in Abschnitt 4)

Curie-Punkte bis zu etwa $1,5^\circ$ beobachtet, wahrscheinlich als Folge von unterschiedlichen Verunreinigungen. Zum Beispiel sinkt durch Verunreinigung mit 1% Ammoniumsulfat der Curie-Punkt bereits um etwa 15° .

Um Verwechslungen mit dem unteren Curie-Punkt des Seignettesalzes bei -18° zu vermeiden, wollen wir den oberen Curie-Punkt des Gebietes I als den höheren (oberen), den des Gebietes II als den tieferen (oberen) Curie-Punkt bezeichnen.

Nach allen Zerschneidungen war die Summe der Kapazitäten der Einzelplättchen gleich oder nur wenig größer als die Kapazität der Ausgangsplatte. Die unzerschnittene Platte verhält sich also elektrisch wie die Parallelschaltung der Teilplatten, wobei sich eine kleine Abweichung dadurch ergeben kann, daß bei unterschiedlicher DK in den beiden Gebieten die mit der elektrischen Polarisierung verbundenen piezoelektrischen Verformungen sich ebenfalls verschieden stark ausbilden und sich dabei mechanisch etwas behindern.

4. Polarisationsoptische Untersuchungen

Bekanntlich lassen sich im Polarisationsmikroskop die spontan polarisierten Domänen sichtbar machen. Nach MITSUI und FURUICHI⁵

⁵ MITSUI, T., u. J. FURUICHI: Phys. Rev. **90**, 193—202 (1953).

bilden sich die Domänen in Streifen parallel zur b - oder c -Achse aus. Man spricht dementsprechend von b - oder c -Domänen.

Wir konnten feststellen, daß sich bei frisch gezüchteten Kristallen im Gebiet I fast nur b -Domänen, im Gebiet II fast nur c -Domänen befinden (vgl. Fig. 6). Einschlüsse von Domänen mit der jeweils anderen Wandrichtung kommen in beiden Gebieten vor. Es entsteht die Frage, ob die Curie-Temperatur von der Lage der Platte im Kristallblock oder von der Domänenstruktur abhängt. Hierzu wurde aus dem Gebiet II einer Kristallplatte ein verhältnismäßig großer Einschuß von b -Domänen

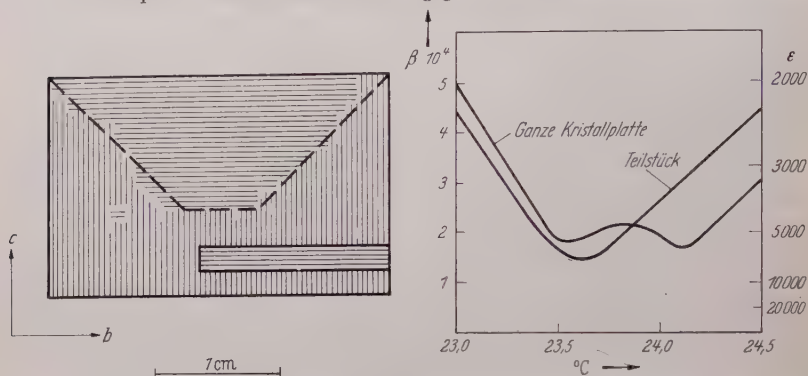


Fig. 5. Reziproke freie Dielektrizitätskonstante einer Kristallplatte mit den Gebieten I und II und die DK eines kleinen Teilstückes mit b -Domänen aus dem Gebiet II. Die gestrichelte Linie stellt die Grenzen zwischen den Gebieten I und II dar, die ausgezogene Linie grenzt das herausgeschnittene kleine Kristallstückchen ab

herausgeschnitten. Die DK-Messung an diesem kleinen Kristallstück mit den Abmessungen $14,9 \times 1,9 \times 0,97 \text{ mm}^3$ zeigt einwandfrei (Fig. 5), daß auch für dieses b -Domänengebiet der tiefere Curie-Punkt gültig ist. Entsprechend trat für c -Domänen des Gebietes I der höhere Curie-Punkt auf. *Die Curie-Temperatur wird also vom Ort im Ausgangskristall bestimmt und nicht von der Domänenstruktur.*

Verschiedene Domänenstrukturen sind in den Fig. 6—10 abgebildet. In Fig. 6 sieht man Übersichtsaufnahmen von fünf Kristallplatten aus einem Einkristall, die zwischen gekreuzten Polarisatoren photographiert wurden. Mit zwei Platten wurde eine Wärmebehandlung durchgeführt; nach dem Abkühlen unter den Curie-Punkt bildeten sich kaum noch b -Domänen, sondern fast nur die nach MITSUI und FURUICHI⁵ stabileren c -Domänen aus. Trotzdem bleibt die Grenze zwischen den Gebieten I und II sichtbar. Häufig ist sie polarisationsoptisch sogar oberhalb des Curie-Punktes noch zu sehen, selbst wenn der Kristall in unpolarisiertem Licht völlig störungsfrei erscheint. Ein Beispiel hierfür ist in Fig. 7 abgebildet. In manchen Fällen ist oberhalb des Curie-Punktes auch eine scheinbare Domänenstruktur sichtbar. Es handelt sich dabei jedoch stets um mechanische Spannungen; teilweise kann man in der Nähe

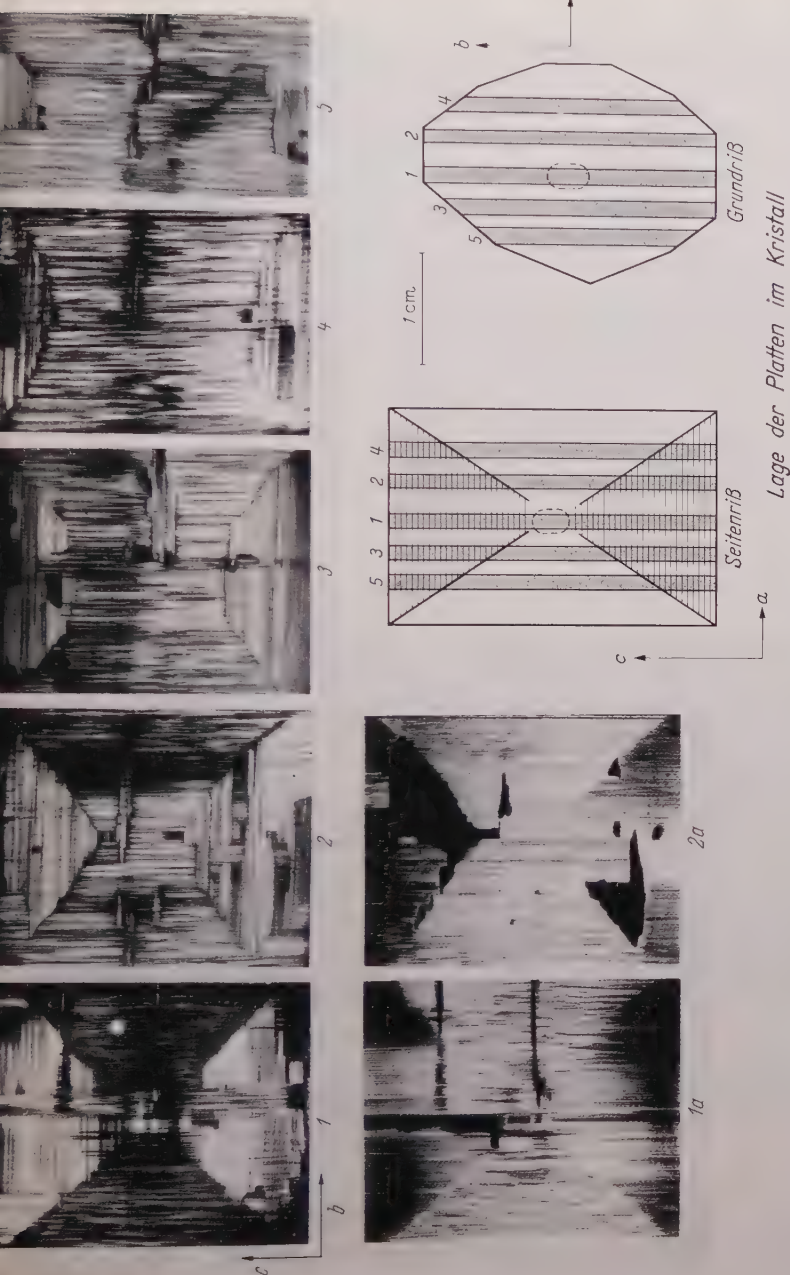


Fig. 6. Übersichtsaufnahme der Domänenstruktur von fünf Platten aus demselben Kristall. Die Skizze zeigt die ursprüngliche Lage der Platten im Kristallblock. In der oberen Bildreihe ist zu sehen, daß die Gebiete I, deren Flächenanteil von links nach rechts abnimmt, überwiegend *b*-Domänen, die Gebiete II überwiegend *c*-Domänen enthalten. Die Bilder 1a und 2a zeigen die Platten 1 und 2, nachdem sie 2 Std lang auf 40° C erwärmt worden waren. Die Platten besitzen jetzt auch im Gebiet I überwiegend *c*-Domänen. Trotzdem heben sich die Gebiete I und II noch deutlich voneinander ab. Um größere Kontraste zu erhalten, wurden die Platten für die Aufnahmen zum Teil leicht verkratzt, so daß die Domänenwände nicht immer parallel zum Bildrand verlaufen. Die äußersten Ränder der Platten sind nicht abgebildet

derartiger Scheindomänen kleine Risse in den Kristallplatten sehen. Beim Abkühlen unter den Curie-Punkt richten sich die Domänen nach

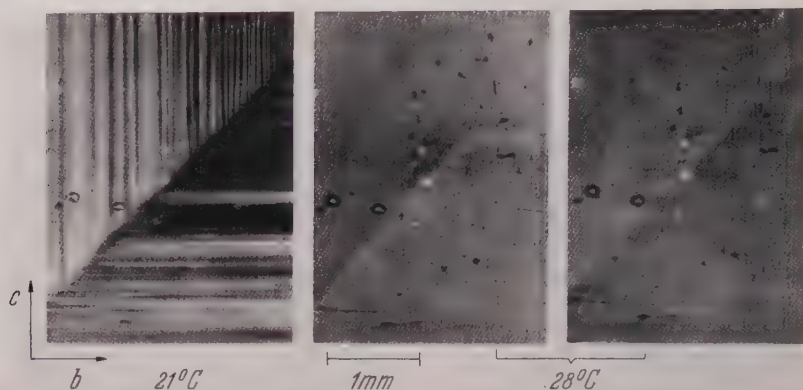


Fig. 7. Grenze zwischen den Gebieten I und II im Polarisationsmikroskop unterhalb und oberhalb des Curie-Punktes. Oberhalb des Curie-Punktes sind beide Dunkelstellungen wiedergegeben; außer einer schwachen Oberflächenstruktur sieht man dort nur noch die Helligkeitsunterschiede, mit der die beiden Gebiete zwischen gekreuzten Polarisatoren erscheinen

derartigen Spannungen aus, wie an einem Beispiel in Fig. 8 gezeigt ist. Über den Einfluß mechanischer Spannungen auf die Domänenstruktur

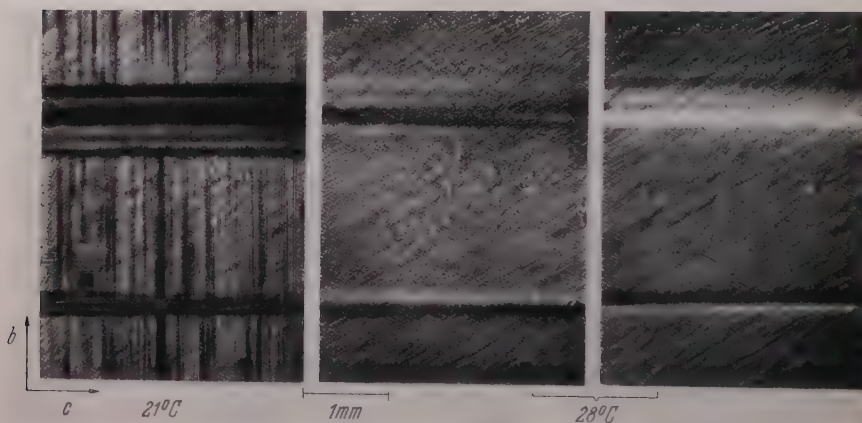


Fig. 8. Spannungstreifen oberhalb des Curie-Punktes, in beiden Dunkelstellungen wiedergegeben, beeinflussen die Domänenstruktur, die sich unterhalb des Curie-Punktes ausbildet. Die Platten hatten 15 Jahre lang bei Zimmertemperatur gelagert und besaßen, von den Domänen in den Spannungstreifen abgesehen, fast nur *b*-Domänen. Die in den Bildern sichtbare Schrägstreifung ist eine Oberflächenstruktur

wurde schon von mehreren Verfassern berichtet^{5,6}. Solche durch Spannungen hervorgerufenen Domänen sind gegen eine vorausgegangene Wärmebehandlung viel beständiger als andere Domänenstrukturen.

⁶ FISCHER, E.: Naturwiss. **41**, 116—117 (1954).

Lagert man die Kristallplatten mehrere Monate, so bilden sich kompliziertere Domänenanordnungen aus (Fig. 9). Besonders auffällig

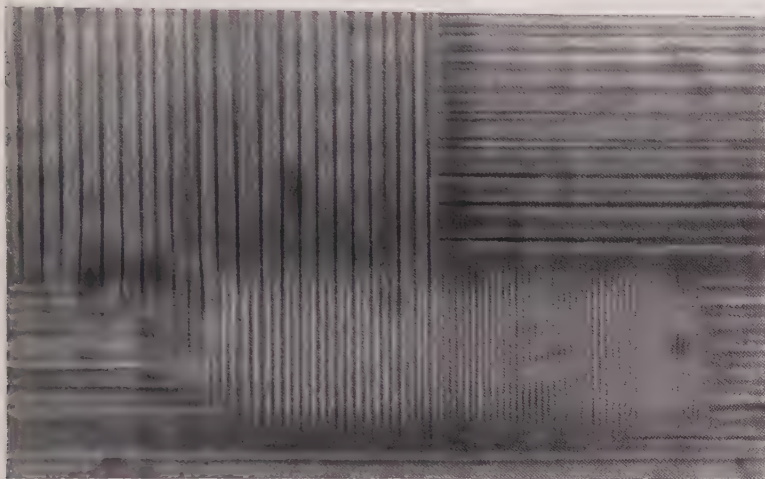


Fig. 9. Domänenstruktur, die für eine abgelagerte Kristallplatte (3 Monate bei etwa 20° C und 79% relativer Luftfeuchtigkeit) typisch ist. Vergrößerung 30-fach

sind dabei die gleichmäßigen spitzen Ausläufe von Domänen, die auf ein Gebiet mit senkrechter Wandrichtung stoßen (Fig. 10). Eine Wärme-

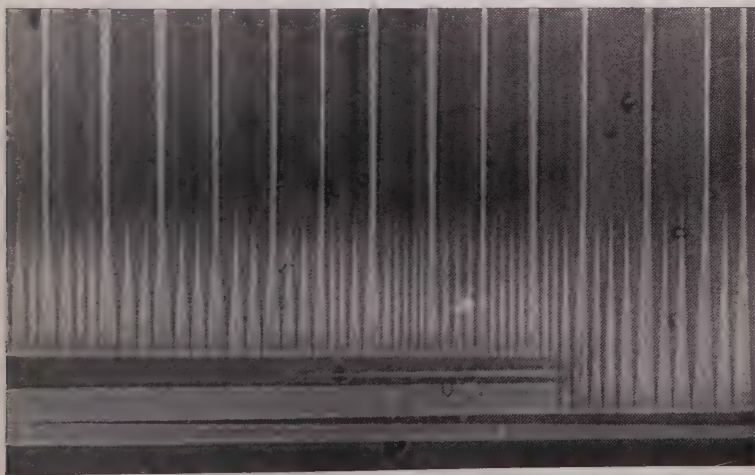


Fig. 10. Typische Spitzen in der Domänenstruktur eines abgelagerten Kristalls beim Auftreffen von *b*- auf *c*-Domänen. Vergrößerung 30-fach

behandlung führt wieder auf einfachere Domänenstrukturen. An etwa 15 Jahre alten, industriell hergestellten Kristallen fanden sich auffallenderweise fast nur sehr schmale *b*-Domänen (vgl. Fig. 8), die auch nach

längerer Erwärmung über den Curie-Punkt immer wieder zum Vorschein kamen. Möglicherweise stammen diese Platten aus dem Gebiet I von sehr großen Einkristallen, und die Struktur ist durch die lange Lagerung stabiler geworden.

5. Diskussion

Die Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Lage im Kristall entsteht vermutlich durch eine beim Wachstum auftretende Verzerrung des Gitters. Es kann sich dabei nicht um eine Verspannung der beiden Gebiete gegeneinander handeln, denn dann müßte der Effekt beim Zerschneiden verschwinden, sondern es müssen Baufehler unterschiedlichen Ausmaßes in den verschiedenen Wachstumsgebieten vorliegen. Der hier beschriebene Effekt dürfte verwandt sein mit der Abhängigkeit der ferroelektrischen Hysterese von der Lage im ursprünglichen Einkristall bei Guanidin-Aluminium-Sulfat-Hexahydrat (GASH), die von HOLDEN u. Mitarb.⁷ kürzlich beobachtet wurde.

Im allgemeinen erklärt man sichtbare „Sanduhren“ in Kristallen damit, daß Verunreinigungen an verschiedenen Wachstumsflächen in verschiedener Konzentration eingebaut werden. Da die Curie-Temperatur des Seignettesalzes mit wachsender Verunreinigung sinkt⁴, liegt die Erklärung nahe, daß das Gebiet II stärker verunreinigt ist als das Gebiet I. Jedoch weist bei schlechtem Wachstum vorwiegend das Gebiet I mit dem höheren Curie-Punkt die sichtbaren Störungen auf (vgl. Fig. 1, zweiter Kristall von rechts), so daß dort vermutlich auch Verunreinigungen bevorzugt eingebaut werden. Noch wesentlicher ist die Konstanz des Abstandes der beiden Curie-Punkte voneinander. Geringe Verunreinigungen sind in unseren Kristallen vorhanden und dafür verantwortlich, daß die oberen Curie-Punkte von Kristallblock zu Kristallblock unterschiedlich sind. Wenn Verunreinigungen auch für die Differenz zwischen höherem und tieferem Curie-Punkt verantwortlich wären, müßte die Differenz einen Gang mit dem absoluten Wert der Curie-Temperatur zeigen. Das wurde jedoch auch nicht andeutungsweise gefunden.

Die Curie-Konstanten aus dem Curie-Weißschen Gesetz für ϵ lagen bei allen untersuchten Kristallen in beiden Gebieten nahe bei $2,70 \cdot 10^3$. Dieser Wert gilt für Temperaturen unmittelbar oberhalb des Curie-Punktes. Ein Vergleich mit dem von 24 bis 32° C gültigen Wert $2,27 \cdot 10^3$ ¹ stimmt mit der schon früher ausgesprochenen Vermutung überein, daß eine über einen größeren Temperaturbereich ausgeführte sehr genaue Messung keine Gerade, sondern eine leicht gekrümmte Kurve für β er-

⁷ HOLDEN, A.N., W. J. MERZ, J. P. REMEIK u. B. T. MATTHIAS: Phys. Rev. **101**, 962—966 (1956).

geben würde, bei der bis zum Auflösungspunkt bei 55°C keine weitere Temperatur mehr besonders ausgezeichnet ist.

Das überwiegende Auftreten von b -Domänen im Gebiet I und von c -Domänen im Gebiet II legt den Gedanken nahe, daß auf Grund der Wachstumsbedingungen die Wände bevorzugt parallel zur äußeren Kristallbegrenzung liegen. Das wäre zu erwarten, wenn jeweils nach störungsfreiem Wachstum einer Schicht von Domänendicke eine gestörte Schicht eingelagert wird, und diese eine bevorzugte Lage für eine Wand darstellt. Vielleicht besteht hier ein Zusammenhang zu dem Ergebnis von STRAUBEL-FISCHER⁸, daß sich b -Domänen stets parallel zur a -Achse in die Tiefe hinein fortsetzen, während die c -Domänen mit der a -Achse einen Winkel einschließen. Die von STRAUBEL-FISCHER angegebenen Winkel (bis 15°) reichen allerdings für diese Erklärung nicht aus. Zur Klärung dieser Frage müssen weitere Ergebnisse, insbesondere über die Tiefenausdehnung der Domänen in den beiden Gebieten, abgewartet werden.

Die Annahme eines schichtweisen Einbaus von Störungen erfaßt jedoch, wie man schon durch die mögliche Änderung der Domänenstruktur nach einer Wärmebehandlung sieht, nur einen von vielen Gründen für die jeweilige Wandlage. Es erscheint jedoch nicht gerechtfertigt, die elektrostatische Streufeldenergie mit in die Betrachtungen einzubeziehen. Die Domänenstruktur erwies sich nämlich bei allen unseren Untersuchungen unabhängig davon, ob der Kristall mit kurzschließenden Elektroden versehen war oder nicht; auch zwischen Kristallen, die bei Temperaturen unterhalb oder oberhalb des Curie-Punktes gewachsen waren, war kein Unterschied in der Domänenstruktur festzustellen.

Weiterhin kann man sich die Frage stellen, ob der ε -Wert, der am Curie-Punkt angenommen wird, nur durch Störungen im Kristallbau bedingt ist, oder ob ε auch bei völlig einwandfrei gebauten Kristallen keine beliebig hohen Werte annimmt. An unseren besten Kristallen fanden wir für den Curie-Punkt $\varepsilon = 15\,000$. Für Störeinflüsse kann man folgende Abschätzung machen:

a) Bei einer entwässerten Oberflächenschicht oder einer Schmutzschicht mit der relativen Dielektrizitätskonstante ε_L und der Dicke w zwischen Kristall und Elektroden würde man bei dielektrisch unendlich weichem Material einen Meßwert $\varepsilon = \varepsilon_L \cdot d/w$ erhalten. Für $\varepsilon_L = 10$, $d = 1\text{ mm}$ und $\varepsilon = 15\,000$ folgt daraus $w = 0,6\text{ }\mu$. Eine gestörte Oberflächenschicht der Größenordnung $300\text{ m}\mu$ auf jeder Seite ist aber nicht unmöglich. Das Absinken des am Curie-Punkt angenommenen Maximalwertes von ε mit fallender Luftfeuchtigkeit⁹ läßt sich mit dieser Annahme

⁸ STRAUBEL-FISCHER, E.: Naturwiss. **44**, 230—231 (1957).

⁹ KAWAI, H.: J. Phys. Soc. Jap. **3**, 8—12 (1948).

durch eine entwässerte Oberflächenschicht erklären, deren Dicke mit sinkender Luftfeuchtigkeit zunimmt.

b) Wenn man den Einbau von Fremdstoffen mit einer DK $\epsilon_L \approx 10$ sich ganz grob kontinuumsmäßig so vorstellt, daß am Ort eines Fremdmoleküls die DK ϵ_L und in der Umgebung die DK des ungestörten Seignettesalzes herrscht, so erhält man die Größenordnung des Einflusses der eingebauten Störung, indem man alle Fremdmoleküle auf eine Schicht zusammenzieht. Die DK des Seignettesalzes in der *b*- und *c*-Richtung liegt ja ebenfalls in der Größenordnung 10, und damit führt nicht nur ein geradliniges Durchsetzen der Störung mit dem elektrischen Fluß, sondern auch ein Umweg des Flusses um die Störung herum über dielektrisch harte Wegstrecken. Unter dieser Annahme würden 0,06 (Volumen-) % Verunreinigungen keine höheren Meßwerte als 15 000 zulassen.

Es erscheint deshalb durchaus möglich, daß die DK von völlig störungsfreiem Seignettesalz am Curie-Punkt tatsächlich beliebig groß wird. Der am Curie-Punkt angenommene Wert beschriebe dann lediglich die Reinheit und Homogenität des Kristalls.

Wir möchten Herrn Professor Dr. H. BITTEL für das ständige fördernde Interesse an diesen Untersuchungen und für die Bereitstellung von Institutsmitteln herzlich danken.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Bonn

Ein Halbleiterdetektor für Schwefel- und Selenmolekularstrahlen

Von

W. GEBHARDT und O. OSBERGHAUS

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 6. September 1957)

Die Widerstandsänderung von Halbleitern bei Einlagerung von Fremdatomen kann zum Nachweis von Molekularstrahlen verwendet werden. Kupferoxydul-Schichten und Cadmiumsulfid-Einkristalle wurden auf ihre Eignung als Detektor für Schwefel- und Selenmolekularstrahlen untersucht. Cu_2O -Schichten erweisen sich als gut geeignet für den Nachweis von Schwefel und Selen. Die Reproduzierbarkeit ist ausreichend, und die Schichten sind über längere Zeit brauchbar. Die untere Nachweisgrenze liegt bei Molekularstrahlintensitäten von etwa 10^8 Molekülen S_8 pro cm^2 und sec. Der Zeitbedarf für eine Messung ist etwa 1 min. Bei den CdS-Einkristallen ist die Empfindlichkeit erheblich kleiner und sehr von den individuellen Kristalleigenschaften abhängig. Die Präparate sind außerdem jeweils nur für eine kleine Zahl von Messungen verwendbar.

Meßverfahren

Der quantitative Nachweis von neutralen Atom- bzw. Molekularstrahlen erfordert verhältnismäßig großen Aufwand, wenn man vom Langmuir-Taylor-Detektor für Alkali-Atome absieht. Deshalb erscheint es immer noch lohnend, sich nach einfachen Nachweismethoden umzusehen. Nun ist bekannt, daß Halbleiter geeigneter Zusammensetzung ihren Widerstand schon bei sehr kleinen Verunreinigungen erheblich verändern. FRICKE und FRIEDBURG [1] haben am Beispiel einer Cu_2O -Schicht in einem Jod-Molekularstrahl gezeigt, daß diese Widerstandsänderung zur Messung von Molekularstrahlintensitäten verwendet werden kann.

Die Messung gestaltet sich folgendermaßen: Man „belichtet“ den Halbleiter im Vakuum eine bestimmte Zeit mit dem Molekularstrahl. Die dabei auftretende Widerstandsänderung wird gemessen. Dann heizt man bei einer definierten Temperatur die Fremdatome bis zum Anfangswert des Widerstandes aus und kann eine neue Messung anschließen.

Bei der Messung bilden die nicht mit den metallischen Elektroden bedeckten Teile des Halbleiters einen Detektorspalt von einigen Millimetern Länge und einigen zehntel Millimetern Breite. Halbleiterschicht und Elektroden sind auf ein dünnes Quarzplättchen aufgebracht, das mit seiner Unterseite auf einem kleinen Kupferklotz aufliegt und so

meßbar auf erhöhte Temperatur gebracht werden kann. Die Widerstandsmessung erfolgt in einer Brückenschaltung mit Elektrometerröhrenverstärker und Galvanometer als Anzeigegerät. Bis zu Widerständen von $10^9 \Omega$ hinauf sind Widerstandsänderungen von 0,3 % noch feststellbar.

Es wurde nach einem Molekularstrahldetektor für die Elemente der Sauerstoffgruppe des Periodischen Systems gesucht. Dafür kommen auf Grund ihrer bekannten Halbleitereigenschaften unter anderem in Frage PbS, CdS, Cu_2O und ZnO. Gemessen wurden aufgedampfte Cu_2O -Schichten und dünne CdS-Einkristalle in Schwefel- und Selenmolekularstrahlen.

Messungen an Cu_2O -Schichten

Als Elektrodenmaterial wurde Aluminium auf dünne Quarzplatten aufgedampft und dabei ein Spalt von 0,2 bis 0,5 mm frei gelassen. Die Kontakte wurden beglimmt und bei einem Restgasdruck von etwa

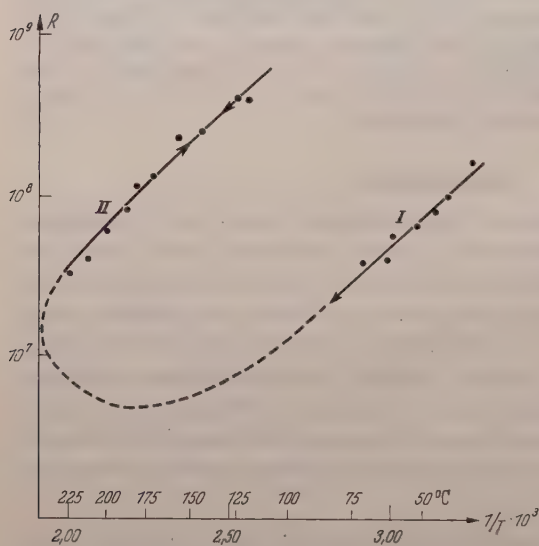


Fig. 1. Beschreibung siehe Text

$2 \cdot 10^{-5}$ Torr mit einer sehr dünnen Kupferschicht bedampft. Als Maß für die Schichtdicke diente der Widerstand der aufgedampften Schicht während des Bedampfens. Der unmittelbar nach dem Aufdampfen im Vakuum gemessene Widerstand R ist keineswegs durch die metallische Leitfähigkeit des Kupfers gegeben. Eine Abschätzung der Schichtdicke aus der verdampften Kupfermenge ergibt etwa 400 Å. Bei einem Spalt von 10 mm Länge und 0,4 mm Breite errechnet man daraus für metal-

lisches Kupfer einen Widerstand von etwa $0,02 \Omega$, während 150Ω gemessen wurden. Die Schicht ist nach dem Aufdampfen ein Gemisch von Cu_2O und Cu mit eingelagerten Gasatomen [2]. Trotz der Verunreinigungen erlaubt es die Widerstandsmessung, bei Konstanzhaltung von Restgasdruck und Aufdampfgeschwindigkeit eine reproduzierbare Schichtdicke herzustellen. Wird die Schicht bei 130°C unter Atmosphärendruck etwa 1 Std getempert, so steigt der Widerstand auf

ungefähr $10^9 \Omega$ an. Das Verhalten einer so oxydierten Schicht beim Hochheizen im Vakuum zeigt Fig. 1. Der Widerstand sinkt zunächst ab (Zweig I), kommt dann bei höherer Temperatur in einen Instabilitätsbereich und erreicht nach Durchlaufen eines Minimums in wenigen Minuten bei 200°C einen stabilen Wert. Nach diesem Ausheizverfahren ist der Widerstand eine eindeutige Funktion der Temperatur (Zweig II). Nach Lagern an der Luft bzw. nach Beschuß mit einem Selen- oder Schwefelmolekularstrahl unterhalb von 100°C wiederholt sich beim Hochheizen die ganze Erscheinung: Der Widerstand durchläuft wiederum einen Instabilitätsbereich, bis nach Ausheizung bei 200°C ein stabiler Zustand erreicht wird. Offenbar wird bei dieser Temperatur ein Überschuß von Sauerstoff, Schwefel oder Selen aus der Schicht ausgeheizt.

Es zeigt sich, daß die „Empfindlichkeit“ des Detektors (die relative Widerstandsänderung bei Beschuß mit einer vorgegebenen Zahl von S_8 - oder Se_8 -Molekülen) vom Schichtwiderstand R beim Aufdampfen nahezu unabhängig ist, solange R zwischen 50 und 1000Ω liegt. Eine Erhöhung der Empfindlichkeit läßt sich erreichen, wenn die Schicht auf eine aufgerauhte Quarzoberfläche aufgedampft wird.

Präparate mit Aluminium als Kontaktmaterial weisen auch nach längerem Gebrauch keine Gleichrichtereffekte auf, die eine Änderung der Kontakte anzeigen würden. Die Unruhe des Meßstromes, die die Empfindlichkeit des Detektors begrenzt, ist bei den meisten Präparaten etwa 0,3%. Vergrößert sich die Unruhe nach einigen Stunden, so läßt sich eine erneute Beruhigung dadurch erreichen, daß man bei 200°C einige Minuten 220 V Wechselstrom an den Halbleiter legt.

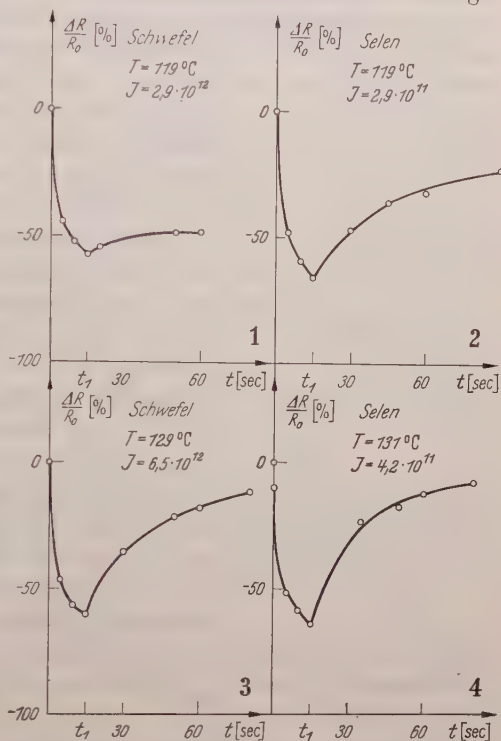


Fig. 2. Widerstandsänderung $\Delta R/R_0$ einer Cu_2O -Schicht im Schwefel- bzw. Selenmolekularstrahl bei zwei verschiedenen Temperaturen T des Halbleiters. Der Strahl wird zur Zeit $t = 0$ eingeschaltet und zur Zeit $t_1 = 15$ sec wieder unterbrochen. J ist die Zahl der S_8 - oder Se_8 -Moleküle pro cm^2 und sec im Strahl

Fig. 2 zeigt einige typische Meßkurven für Schichten mit einem Widerstand von etwa $10^8 \Omega$ bei einer Arbeitstemperatur von 119 bzw. 130° C. Die Präparate wurden jeweils 15 sec dem Molekularstrahl ausgesetzt. Der Widerstand nimmt dabei ab und steigt nach Abschalten des Strahles langsam wieder an, wobei die Geschwindigkeit des Wiederanstiegs von der Temperatur des Halbleiters abhängt, wie der Unterschied zwischen den Meßkurven 1 bzw. 2 und 3 bzw. 4 zeigt. Bei der

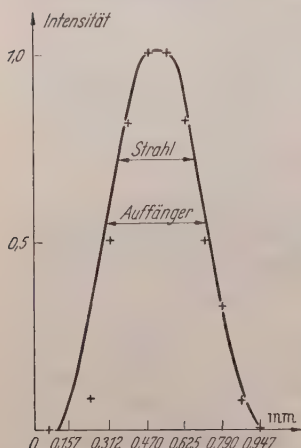


Fig. 3. Ausmessung eines Schwefel-Molekularstrahls

Temperatur von 130° C sind Intensitätsmessungen im Abstand von 1 bis 2 min möglich. Wie man sieht, ist die Empfindlichkeit für Selen größer als für Schwefel.

Der Zusammenhang zwischen der Zahl N der Moleküle, die auf die Schicht treffen, und der Widerstandsänderung ΔR ist nicht linear, sondern folgt annähernd dem Gesetz $\Delta R/R_0 \sim N^{\frac{1}{2}}$.

Bei 15 sec Meßzeit beträgt die kleinste noch feststellbare Molekularstrahl-Intensität etwa 10^8 Moleküle S_8 pro cm^2 und sec. Maßgebend für die Genauigkeit einer Intensitätsmessung ist vor allem die Temperaturkonstanz des Halbleiters. Eine Schwankung der Halbleitertemperatur um 1° verursacht eine Empfindlichkeitsänderung von etwa 10 %.

Die Messungen werden um so empfindlicher, je tiefer die Temperatur der Cu_2O -Schicht ist, wobei dann allerdings eine größere Ausheizzeit in Kauf genommen werden muß.

Fig. 3 zeigt einen mit dem Cu_2O -Detektor durchgemessenen Schwefelmolekularstrahl. Die ausgezogene Kurve ist aus der Geometrie der Anordnung errechnet.

Messungen an Cadmiumsulfid-Einkristallen

Versuche, Cadmiumsulfidschichten aufzudampfen, wurden wegen zu großer Schwierigkeiten abgebrochen, obwohl es natürlich wünschenswert ist, als Molekularstrahldetektor eine möglichst dünne Halbleiterschicht zur Verfügung zu haben. Für die Messungen mußten darum Cadmiumsulfid-Einkristalle verwendet werden, die Abmessungen von etwa 1×5 mm haben und ungefähr 0,1 mm dick sind. Diese Kristalle wurden uns vom Institut für Theoretische Physik der Universität Bonn freundlicherweise zur Verfügung gestellt. Die CdS-Kristalle wurden mit Siliconharz auf ein dünnes Quarzplättchen aufgekittet und nach Beglimmen mit Aluminiumelektroden bedampft [3], wobei ein Spalt von

etwa 0,2 mm Breite durch Abschattung frei gehalten wurde. Das Cadmiumsulfid läßt sich durch Ausheizen bei 400° C für den Molekularstrahl nachweis aktivieren. Leider ist die Unruhe des Widerstandes von etwa $10^6 \Omega$ erheblich größer als bei den Cu_2O -Schichten (etwa 1%). Außerdem ist die Empfindlichkeit wesentlich kleiner. Bei Beschuß mit Schwefel ändert sich der Widerstand um etwa 10% bei einer Strahlintensität von 10^{13} Molekülen/ $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ und 90 sec Expositionszeit. Die Reproduzierbarkeit ist schlecht, und die Empfindlichkeit nimmt bei jeder weiteren Messung ab. Etwas günstiger liegen die Verhältnisse beim Selen. Hier erwies sich allerdings von vier untersuchten Kristallen nur einer als empfindlich. Die Widerstandsänderung bei 10^{13} Molekülen/ $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ ist etwa 30%. Beim Selen läßt sich die Messung einige Male wiederholen, aber auch hier ist die Reproduzierbarkeit schlechter als beim Cu_2O , und nach einer gewissen Zeit sinkt die Empfindlichkeit ab, weil sich das aufgenommene Selen offenbar nicht quantitativ ausheizen läßt.

Es ist wahrscheinlich, daß aufgedampfte CdS-Schichten wesentlich günstigere Eigenschaften zeigen.

Herrn Professor Dr. W. PAUL danken wir für die ständige Unterstützung und Förderung dieser Arbeit. Herrn Dr. J. FASSBENDER haben wir für seine bereitwillige Hilfe und wertvolle Ratschläge bei der Präparierung der Halbleiterschichten und Kontakte zu danken.

Literatur

[1] FRICKE, G., u. H. FRIEDBURG: Z. Physik **141**, 171 (1955). — [2] MAYER, H.: Physik dünner Schichten, Bd. II, S. 293 ff. Stuttgart 1955. — [3] FASSBENDER, J.: Z. Physik **145**, 301 (1956).

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Bonn

Das Zerfallsschema des Ag^{105}

Von

M. RAETHER

Mit 12 Figuren im Text

(Eingegangen am 14. September 1957)

Der Zerfall des Ag^{105} wurde mit einem Koinzidenz-Spektrometer untersucht. Neben den bisher bekannten γ -Linien des Tochterkerns Pd^{105} wurde eine neue Linie bei 1090 keV gefunden. Koinzidenzmessungen ergaben ein neues koinzidentes Linienpaar 281—393 keV. Durch Winkelkorrelationsmessungen wurden die Spins der 281 und 345 keV-Niveaus zu $7/2$ bzw. $5/2$ bestimmt. Die Spinzuzuordnung für die 443—654 keV-Kaskade ist nicht eindeutig, da offenbar eine Multipolmischung vorliegt. Für die Lebensdauer der 281 und 443 keV-Niveaus werden obere Grenzen angegeben. Unter Verwertung aller Meßergebnisse wird ein Zerfallsschema vorgeschlagen.

Ag^{105} geht durch Elektroneneinfang mit einer Halbwertszeit von 40^d in angeregte Zustände von Pd^{105} über. Der Spin des Grundzustands von Pd^{105} ist aus Hyperfeinstruktur-

messungen zu $I = 5/2 +$ bekannt.

Es bestand die Absicht, im Institut mit einer Molekularstrahlapparatur den Spin des Grundzustands von Ag^{105} zu messen, und unter Verwendung dieser Information das noch sehr wenig bekannte Zerfallsschema des Ag^{105} näher zu untersuchen. Durch Messung von Winkelkorrelationen sollte versucht werden, die Spins von angeregten Zuständen des Pd^{105} zu bestimmen.

Inzwischen wurde der Spin des Grundzustands von Ag^{105} bereits von NIERENBERG [1] zu $I = 1/2$ gemessen, so daß der Ausgangszustand nunmehr festliegt.

Koinzidenzmessungen ergaben drei koinzidente Paare:

64—281 keV
319—331 keV
443—654 keV

Der Zerfall des Ag^{105} wurde von verschiedenen Autoren untersucht [2], [3], [4]. Die letzten Messungen von HAYWARD und HOPPEs [5], die mit einem β -Spektrometer und Szintillationsspektrometer durchgeführt wurden, zeigten, daß der Zerfall des Ag^{105} von folgenden γ -Linien begleitet ist (Tabelle 1).

Tabelle 1

Energie (keV)	Relative Intensität	$K/L + M$ -Kon- versions- koeffizienten
64	40	> 5
157	schwach	
184	schwach	3,0
281	60	8,2
319	schwach	
331	schwach	
345	100	5,8
393	schwach	
443	24	7,0
654	36	

Aus den $K/L + M$ -Konversionskoeffizienten hat HAYWARD geschlossen, daß es sich bei der 64 und 281 keV-Linie um einen M_1 -, bei der 345 keV-Linie um einen E_2 -Übergang handelt, und diese Linien wie folgt in das Zerfallsschema eingeordnet (Fig. 1):

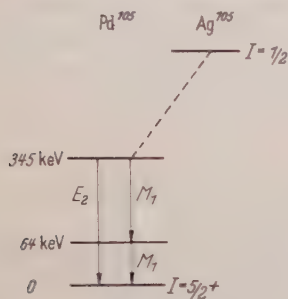


Fig. 1. Einordnung der 64, 281 und 345 keV-Linien in das Zerfallsschema des Ag^{105} nach HAYWARD

Ein vollständiges Zerfallsschema wurde nicht angegeben.

Auf das von JOHNSON [3] angegebene Zerfallsschema soll nicht näher eingegangen werden, da es zahlreiche Widersprüche zu den bisherigen Messungen enthält.

Experimentelle Anordnung.

Für die folgenden Messungen wurde ein Koinzidenz-Spektrometer nach BELL [6] verwendet. Als Szintillationszähler dienten RCA-Multiplier 6342 mit NaJ-Kristallen $1 \times 1\frac{1}{2}$ '' der Firma Harshaw. Die Auflösungszeit konnte je nach Energie der γ -Quanten von $2 \cdot 10^{-9}$ bis $2 \cdot 10^{-8}$ sec für 1 MeV und $6 \cdot 10^{-9}$ bis $2 \cdot 10^{-8}$ sec für 150 keV variiert werden. Die Leistungsfähigkeit des Spektrometers wird durch eine Auflösungskurve für die 1,17–1,33 MeV-Kaskade von Ni^{60} gezeigt (Fig. 2).

Präparatherstellung. Das Ag^{105} wurde durch die Reaktionen $\text{Rh}^{103}(\alpha, 2n)\text{Ag}^{105}$ und $\text{Pd}^{105}(p, n)\text{Ag}^{105}$ hergestellt. Bei der $\text{Rh}(\alpha, 2n)$ -Reaktion wurde ein Rhodiumtarget von 0,2 mm Stärke im Amsterdamer Zyklotron 2 Std mit 1 bis $2 \mu\text{A}$ α -Teilchen von 50 MeV bestrahlt. Das Rhodium wurde anschließend in einem Gemisch von KHSO_4 und H_2SO_4 bei etwa 300°C eine Woche lang gelöst, 5 mg Ag_2SO_4 als Träger zugesetzt und das Ag als AgCl gefällt. Das AgCl wurde in KCN -Lösung gelöst und in ein Glasröhrchen von 2 mm Durchmesser, 3 cm Länge und

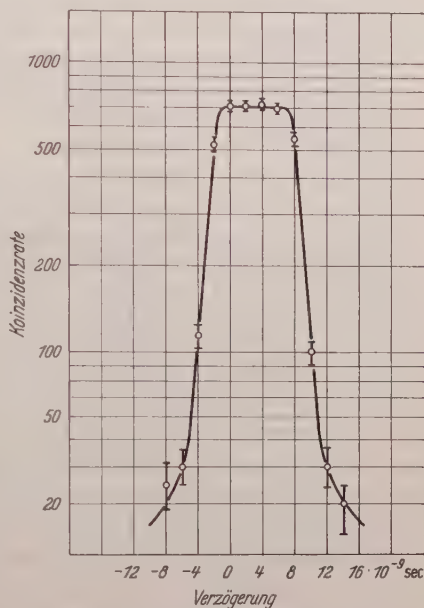


Fig. 2. Koinzidenzauflösungskurve für die 1,17–1,33 MeV-Kaskade des Ni^{60} (Ordinate in willkürlichen Einheiten)

0,1 mm Wandstärke gefüllt. Die Aktivität betrug etwa $10 \mu\text{C}$. Als Fremdaktivität entsteht nur Ag^{106} mit einer Halbwertszeit von 8^{d} ★.

Bei der Pd (p, n)-Reaktion wurde ein Pd-Target von 0,5 mm Stärke in Harwell 2 Std mit $1 \mu\text{A}$ Protonen von 20 MeV bestrahlt. Das Pd wurde in einem Gemisch aus H_2SO_4 und HNO_3 gelöst, 7 mg AgNO_3 als Träger zugesetzt und das Ag als AgCl gefällt. Der Niederschlag wurde in HCN -Lösung gelöst und in ein Glasröhrchen von den oben erwähnten Abmessungen gefüllt. Als Fremdaktivitäten entstehen Ag^{106} und Ag^{110} mit 270^{d} Halbwertszeit★★.

Meßergebnisse

Für die folgenden Messungen wurde das aus Rhodium hergestellte Präparat verwendet. Fig. 3 zeigt das Spektrum zwischen 60 und 700 keV für zwei verschiedene Zeitpunkte. Nachdem die Ag^{106} -Aktivität genügend abgeklungen ist, zeigen sich die schon von HAYWARD gefundenen intensiven Linien von 64, 281, 345, 443 und 654 keV. Die übrigen Linien sind so intensitätsschwach, daß sie mit dem Szintillationspektrometer nicht aufgelöst werden können. Das Spektrum zwischen 600 keV und 1,4 MeV zeigt eine neue Linie bei etwa 1 MeV (Fig. 4). Durch Vergleich mit den gut bekannten γ -Linien von Ni^{60} (1,17 und 1,33 MeV) ergibt sich die Energie zu 1,09 MeV mit einem Fehler von etwa 1%. Die Zeitabhängigkeit der Intensität dieser Linie weist sie als zu Ag^{105} gehörig aus. Dies deutet darauf hin, daß es sich bei dieser Linie um den cross-over zu der 443—654 keV-Kaskade handelt. Erwähnt sei, daß bereits 1942 M. DEUTSCH beim Zerfall von Ag^{105} eine γ -Linie größer 1 MeV beobachtet hat [7].

Koinzidenzmessung. Bei den Koinzidenzmessungen wurde das Präparat zwischen zwei Zähler gestellt und zur Vermeidung von Compton-Koinzidenzen mit einer seitlichen Bleiabschirmung versehen. Ein Kanal wurde auf eine bestimmte Linie eingestellt, und mit dem anderen Kanal das Spektrum durchfahren. Fig. 5 zeigt die Ergebnisse. Die 654 keV-Linie ist nur mit der 443 keV-Linie koinzident, die 443 keV-Linie nur mit der 654 keV-Linie und die 64 keV-Linie nur mit der 281 keV-Linie. Bei der 281 keV-Linie ergeben sich noch Koinzidenzen im Bereich 300 bis 400 keV, desgleichen bei der 345 keV-Linie, wo eine breite Linie bei etwa 325 keV liegt. Wahrscheinlich handelt es sich hierbei um das

★ Herrn Professor P.C. GUGELOT und Herrn Professor A.H.W. ATEN in Amsterdam danke ich für die Durchführung der Bestrahlung und für die Herstellung des Präparates.

★★ Ich danke Herrn Dr. MELLISH, Harwell, für die Durchführung von zwei Bestrahlungen, Herrn Dr. von ERICHSEN, Bonn, danke ich für die Hilfe bei der Aufarbeitung des Präparates.

nicht aufgelöste Paar 319–331 keV. Eine genauere Untersuchung liefert noch ein weiteres Ergebnis. In Fig. 6 wurde ein Kanal auf die mit 1 bis 6 bezeichneten Bereiche eingestellt und mit dem anderen Kanal das Spektrum durchfahren. In Stellung 3 zeigen sich zwei Linien, die der Energie 319–331 und 393 keV zugeordnet werden können. In Stellung 4 überwiegt das Paar 319 bis 331 keV. In Stellung 5 zeigt sich

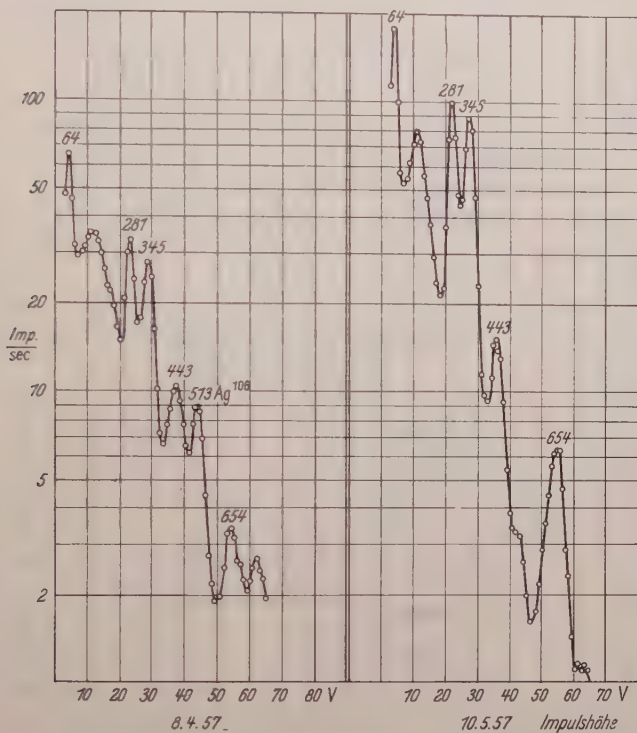
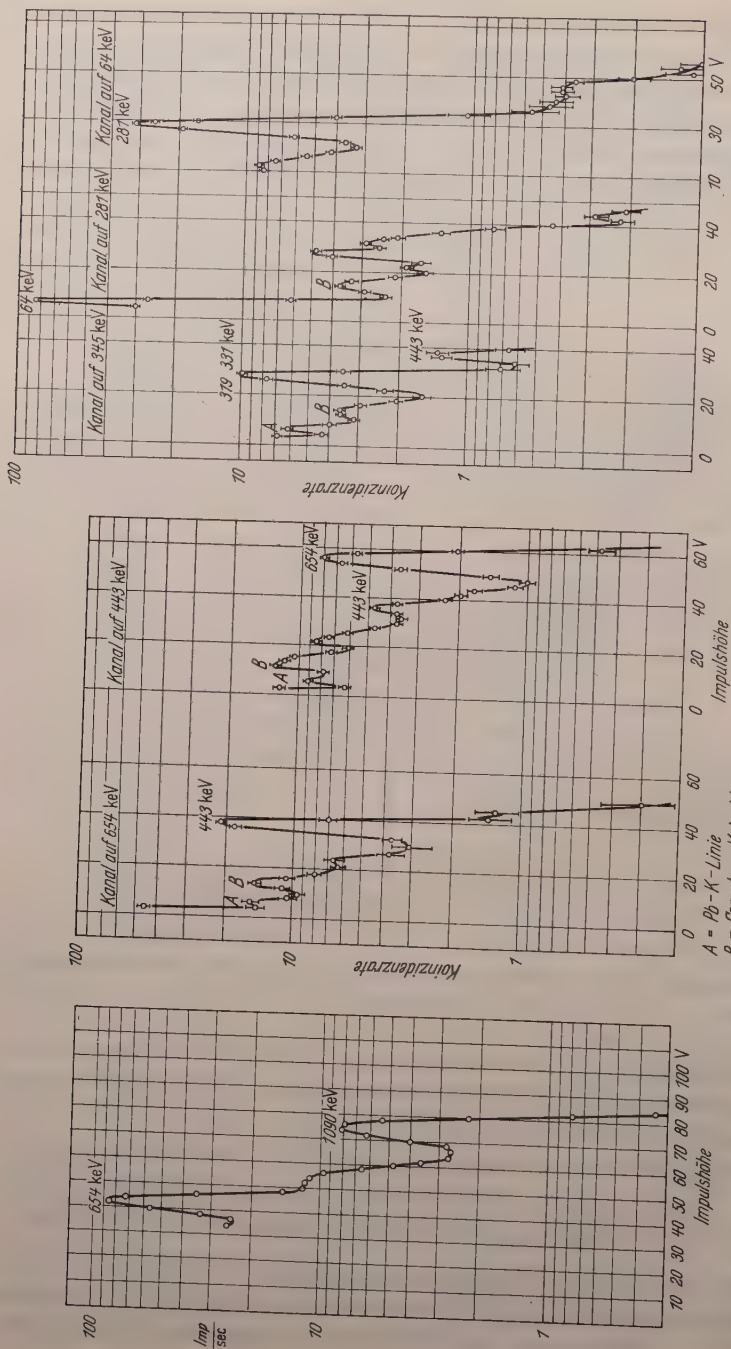


Fig. 3. γ -Spektrum des durch den Rh (α , $2n$)-Prozeß hergestellten Präparates im Bereich zwischen 60 und 700 keV für zwei verschiedene Zeitpunkte

eine Koinzidenz mit der 281 keV-Linie während die 319–331 keV-Linien langsam verschwinden; in Stellung 6 schließlich ergibt sich eine deutliche Koinzidenz mit der 281 keV-Linie.

Hieraus kann man schließen, daß die 393 keV-Linie mit der 281 keV-Linie in Koinzidenz ist, nicht hingegen mit der 345 keV-Linie. Das Zerfallsschema muß also folgendermaßen abgeändert werden: (Fig. 7).

Abschätzung des $f \cdot t$ -Wertes. Um beurteilen zu können, welche Spinwechsel beim K -Einfang vorkommen können, ist die Kenntnis des zugehörigen $f \cdot t$ -Wertes der β -Zerfallstheorie wichtig. Für die Berechnung

Fig. 4. γ -Spektrum des Pd^{103} oberhalb 600 keVFig. 5. Koinzidenzspektrum des Pd^{103}

(Ordinate in willkürlichen Einheiten)

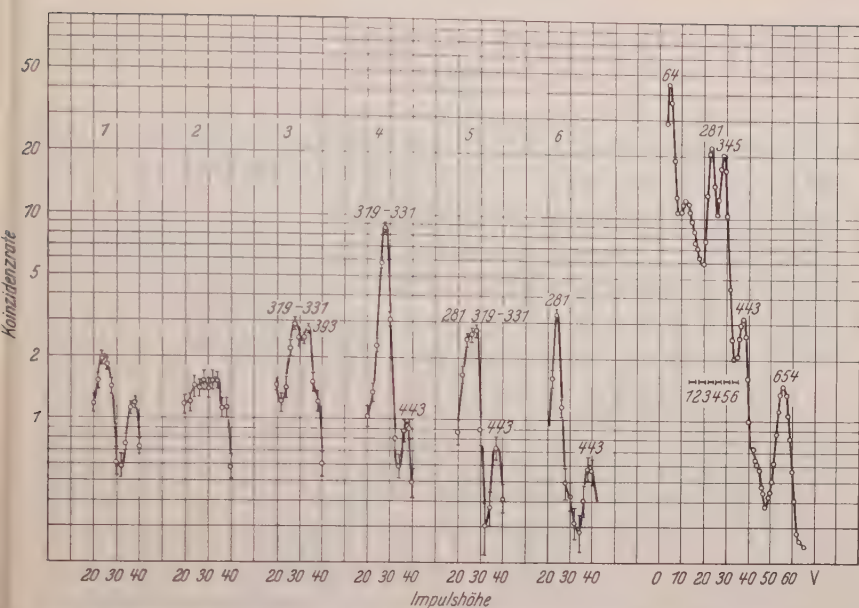


Fig. 6. Koinzidenzspektrum des Pd^{105} im Bereich zwischen 200 und 400 keV (Ordinate in willkürlichen Einheiten)

von $\log f \cdot t$ ist außer der Lebensdauer die Kenntnis der Zerfallsenergie notwendig. Diese läßt sich beim K -Einfang nach drei verschiedenen Methoden bestimmen: Aus der Massendifferenz von Mutter- und Tochterkern, aus dem Spektrum der inneren Bremsstrahlung und aus der Energiebilanz bei Kernreaktionen. Die beiden ersten Methoden scheiden aus, weil im ersten Falle die Masse von Ag^{105} nicht gemessen ist bzw. im zweiten Fall der Untergrund von Ag^{106} den Effekt verdeckt. Die letzte Methode hingegen liefert eine gewisse Abschätzung.

Pd^{105} Ag^{105}
 674 keV

Für die Reaktion $\text{Rh}^{103} + \alpha = \text{Ag}^{105} + 2n$ wurde die Einsatzenergie zu $15,6 \pm 0,5$ MeV bestimmt [8]. Mit den bekannten Massen von Rh, α und n ergibt sich hieraus die Energiedifferenz zwischen Pd^{105} und Ag^{105} , d.h. die Zerfallsenergie zu $E = 1,2^{+0,5}_{-0,1}$ MeV.

Die untere Fehlergrenze ergibt sich aus der Tatsache, daß ein angeregtes Niveau von 1,09 MeV existiert.

Ein weiterer Anhaltspunkt für die Richtigkeit dieser Abschätzung ergibt sich dadurch, daß beim Zerfall von Ag^{105} keine Positronen auftreten, d.h. die Zerfallsenergie nicht wesentlich größer als etwa 1,2 bis

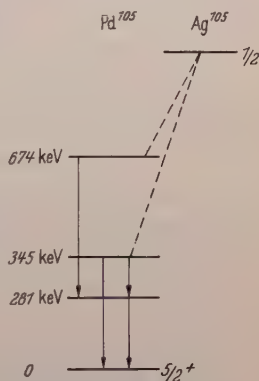


Fig. 7. Durch Koinzidenzmessungen nahegelegte Abänderung des Zerfallschemas

so erhält man

$$a_2 = -0,0988 \pm 0,013$$

$$a_4 = -0,006 \pm 0,015.$$

a_4 ist innerhalb der Fehlergrenzen $= 0$. Man kann daher die Meßpunkte durch die einfachere Funktion

$$W(\vartheta) = 1 + a_2 \cos^2 \vartheta$$

approximieren und erhält

$$a_2 = -0,0937 \pm 0,005$$

bzw.

$$A_2 = -0,0645 \pm 0,0035,$$

wo A_2 der Entwicklungskoeffizient der Darstellung

$$W(\vartheta) = 1 + A_2 P_2(\cos \vartheta)$$

ist.

Es liegt nun nahe, zur Interpretation der Meßergebnisse eine der

Kaskaden $1/2-2-3/2-1-5/2$ oder $5/2-\frac{1}{2}-5/2-\frac{2}{1}-5/2$ mit einer kleinen Beimischung von Quadrupol zu Dipol anzunehmen.

In Fig. 9 ist für die Kaskade $1/2-2-3/2-1-5/2$ der Koeffizient A_2 als Funktion des Mischungsverhältnisses δ aufgetragen. Zu dem gemessenen Wert von A_2 gehören zwei Werte von δ

$$\delta = +0,024 \quad \text{und} \quad \delta = -5,3,$$

von den allerdings nur der erste in Betracht kommt, da einem δ von $-5,3$ eine Beimischung von Dipol zu Quadrupol entsprechen würde.

Diskutiert man eine Beimischung zur Kaskade $5/2-\frac{1}{2}-5/2-\frac{2}{1}-5/2$, so kann man die möglichen Werte von δ einschränken. Schreibt man nämlich die gemischte Kaskade in der Form

$$W(\vartheta) = 1 + A_2^* P_2(\cos \vartheta) + A_4^* P_4(\cos \vartheta),$$

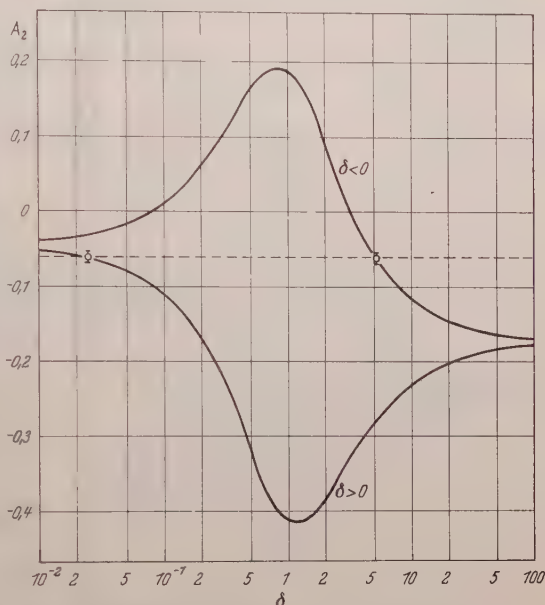


Fig. 9. Abhängigkeit des Koeffizienten A_2 vom Mischungsverhältnis für die $1/2-3/2-5/2$ -Kaskade

so erhält man

$$A_4^* = 0,1574 \frac{\delta^2}{1 + \delta^2}.$$

Da A_4 aus experimentellen Gründen kleiner als 0,015 sein muß, folgt

$$|\delta| < 0,32.$$

Man kann sich also auf die unmittelbare Umgebung von $\delta = 0$ beschränken und erhält:

$$\delta = -0,085 \pm 0,02$$

$$\delta^2 = 0,007 \pm 0,003.$$

Falls bei dieser Kaskade eine Multipolmischung größeren Ausmaßes vorliegt, kann die Winkelkorrelationsmessung allein keine verbindlichen Aussagen über die Spins machen.

Für die Messung der Winkelkorrelation der 64 bis 281 keV-Kaskade war die Aktivität des aus Rh hergestellten Präparates zu schwach. Es wurde daher das aus Pd hergestellte Präparat verwendet. Die Messung der Winkelkorrelation gestaltet sich bei dieser Kaskade inso-

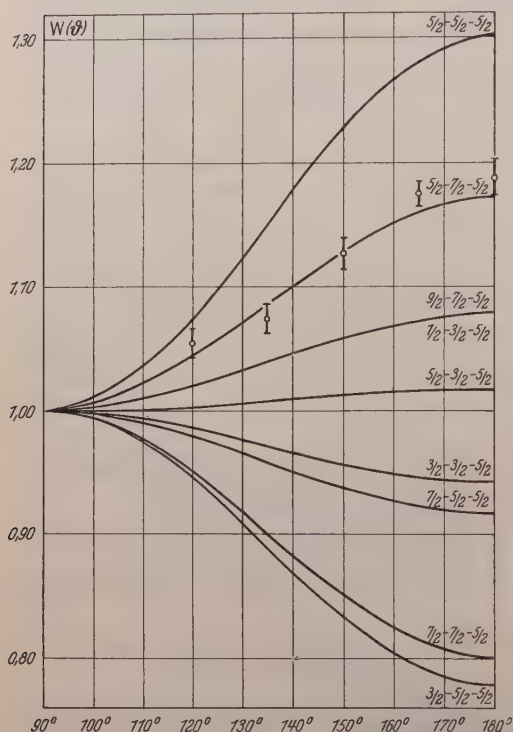


Fig. 10. Winkelkorrelation der 64—281 keV-Kaskade

fern schwieriger, als unter den Linien 64 und 281 keV noch ein koinzidenter Untergrund von Linien höherer Energie von Ag^{105} und der Fremdaktivität Ag^{110} liegt. Es wurde daher folgender Weg eingeschlagen. Kanal 1 wurde auf 64 keV, Kanal 2 auf 281 keV eingestellt und die Winkelkorrelation gemessen. Dann wurde Kanal 1 auf eine Energie von etwa 70 keV eingestellt, und die Winkelkorrelation des Untergrundes ermittelt. Man kann in guter Näherung annehmen, daß der Untergrund bei 70 keV gleich dem bei 64 keV ist. Die Differenz beider Messungen lieferte die gesuchte Winkelkorrelation.

Die Interpretation der Meßergebnisse wird bei dieser Kaskade dadurch sehr erleichtert, daß die Multipolordnungen der Übergänge bereits als M_1 identifiziert worden sind. Fig. 10 zeigt die Meßpunkte mit den

theoretischen Winkelkorrelationen aller möglichen Übergänge. Die Messung weist eindeutig auf die Zuordnung $5/2-7/2-5/2$ hin.

Schließlich wurde noch der Versuch unternommen, die Winkelkorrelation der $393-281$ keV-Kaskade wenigstens angenähert zu ermitteln. Kleine Intensität und mangelnde Kenntnis des Untergrunds

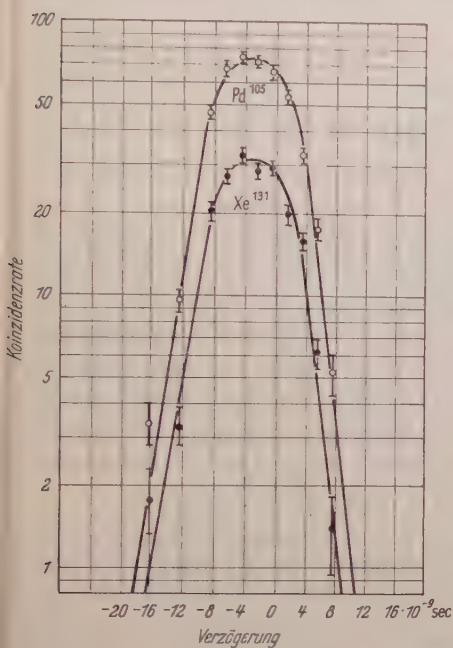


Fig. 11

Fig. 11. Abschätzung der Lebensdauer des 281 keV-Niveaus durch Vergleich der Koinzidenzaufauflösungskurve der $64-281$ keV-Kaskade des Pd^{105} mit der $80-281$ keV-Kaskade des Xe^{131}

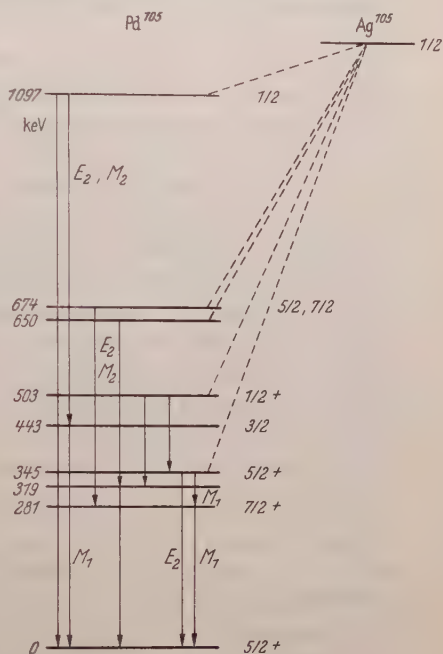


Fig. 12

Fig. 12. Vorgeschlagenes Zerfallsschema des Ag^{105}

machen die Messung sehr ungenau. Es ergab sich

$$\frac{W(180^\circ)}{W(90^\circ)} = 1,05 \pm 0,09.$$

Dies Ergebnis ist verträglich mit den Zuordnungen

$$5/2-2-7/2-1-5/2$$

und

$$7/2-2-7/2-1-5/2.$$

Lebensdauer von angeregten Zuständen. Die Kenntnis der Lebensdauer des mittleren Niveaus einer Kaskade ist wichtig, um beurteilen zu können, ob die Winkelkorrelation durch Wechselwirkung des Kerns mit

äußeren Feldern gestört sein kann. Fig. 11 zeigt für die 64—281 keV-Kaskade die Koinzidenzrate in Abhängigkeit von einer zeitlichen Verzögerung in beiden Kanälen. Zum Vergleich ist dieselbe Kurve für die 80—284 keV-Kaskade von Xe^{131} aufgenommen, bei der das mittlere Niveau eine bekannte Lebensdauer von $4,8 \cdot 10^{-10}$ sec hat [6]. Man sieht, daß die Lebensdauer des 281 keV-Niveaus kleiner als etwa 1 bis $2 \cdot 10^{-9}$ sec sein muß.

Für die 443—654 keV-Kaskade stand ein geeignetes Vergleichspräparat nicht zur Verfügung. Aus der Symmetrie und der Flankensteilheit der Auflösungskurve kann man jedoch schließen, daß auch hier die Lebensdauer kleiner als etwa $4 \cdot 10^{-9}$ sec sein muß.

Unter Verwendung aller bekannten Informationen wird für den Zerfall von Ag^{105} das in Fig. 12 gezeigte Schema vorgeschlagen.

Am besten gesichert sind die Niveaus 281 und 345 keV. Das 319 keV-Niveau ist möglicherweise mit dem beim Zerfall von Rh^{105} beobachteten Niveau von 320 keV identisch; ihm würde dann der Spin $7/2+$ zuzuschreiben sein. Bei der 654 bis 443 keV-Kaskade muß man zulassen, daß die Reihenfolge eventuell umgekehrt ist, so daß statt des 443 keV-Niveaus ein 654 keV-Niveau auftritt. Die Spin- und Multipolzuordnung dieser Kaskade müssen noch durch die Messung von Konversionskoeffizienten erhärtet werden. Spin und Parität des 503 keV-Niveaus sind einer Arbeit von L. A. SLIW und L. K. PEKER [9] entnommen.

Herrn Professor Dr. W. PAUL danke ich für die Anregung und Unterstützung dieser Arbeit, der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Gewährung eines Stipendiums.

Literatur

- [1] SILSBEE, H. B., W. A. NIERENBERG, H. A. SHUGART and P. O. STROM: Bull. of the APS, Dec. 27, 1956. — [2] HAYWARD, R. W.: Phys. Rev. **85**, 760 (1952). — [3] JOHNSON, F. A.: Canad. J. Phys. **31**, 1136 (1953). — [4] ALBURGER, D. E., and B. J. TOPPEL: Phys. Rev. **100**, 1357 (1955). — [5] HAYWARD, R. W., and D. D. HOPPES: Bull. of the APS, Jan. 30, p. 42, 1956. — [6] BELL, R. E., R. L. GRAHAM and H. E. PETCH: Canad. J. Phys. **30**, 35 (1952). — [7] DEUTSCH, M., A. ROBERTS and L. G. ELLIOT: Phys. Rev. **61**, 389 (1942). — [8] PATTEN, D. M. v., and W. WHALING: Rev. Mod. Phys. **26**, 402 (1954). — [9] SLIW, L. A., u. L. K. PEKER: Physikalische Abhandlungen aus der Sowjetunion, Bd. 6, S. 92. Leipzig 1956.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Frankfurt a.M.

Die Temperaturabhängigkeit der optischen Konstanten von Lithiumfluorid und Natriumfluorid im Ultraroten

Von

MANFRED KLIER

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 17. September 1957)

Es wird eine Versuchsanordnung beschrieben, die es gestattet, in der Umgebung der Stelle anomaler Dispersion im Ultraroten die Größe und die Temperaturabhängigkeit des Extinktionskoeffizienten und des Reflexionsvermögens von LiF und NaF im Bereich von -196°C bis $+300^{\circ}\text{C}$ zu messen. Es ergab sich stets eine Zunahme des Extinktionskoeffizienten mit steigender Temperatur, die bei LiF auf der langwelligen Seite wesentlich stärker ist als auf der kurzwelligen. Bei beiden Stoffen auftretende Nebenmaxima verschwinden mit steigender Temperatur auf der kurzwelligen Seite, ein langwelliges Nebenmaximum von LiF wird dagegen intensiver. Das Reflexionsvermögen ist bei beiden Stoffen nur wenig temperaturabhängig.

I. Versuchsanordnung

a) Allgemeines

Bei allen Messungen dieser Arbeit wurde die Strahlung mit 11 Hz moduliert. Auf Einzelheiten der elektronischen Anordnung soll hier nicht näher eingegangen werden. In einer Arbeit von GENZEL und ECKHARDT¹ wird unter anderem der elektronische Teil einer Ultrarotapparatur ausführlich beschrieben, der im wesentlichen mit dem in vorliegender Arbeit benutzten übereinstimmt.

Bei jeder eingestellten Wellenlänge wurde die Strahlungsintensität einmal mit und einmal ohne Probe gemessen (alternierende Messungen) und durch Quotientenbildung die Durchlässigkeit D bzw. das Reflexionsvermögen R ermittelt. Auf diese Weise konnten Fehlereinflüsse (langzeitige Schwankungen der Strahlerintensität und der Luftfeuchtigkeit) eliminiert werden.

Im folgenden sollen die optischen Anordnungen für die jeweiligen Wellenlängenbereiche genauer beschrieben werden. Bei jeder dieser Anordnungen ist die zu untersuchende Probe im Inneren eines Probengefäßes angebracht, das in den Figuren nicht mitgezeichnet ist. Unter e) wird dieses Probengefäß ausführlich beschrieben werden.

¹ GENZEL, L., u. W. ECKHARDT: Z. Physik **139**, 578 (1954).

Als Strahlungsempfänger diene im Bereich 2 bis $27\ \mu$ ein Bolometer mit KBr-Fenster, über $52\ \mu$ ein Bolometer mit einem Fenster aus $0,5\ \text{mm}$ kristallinem Quarz. Die Empfängerfläche war jeweils $6 \times 1\ \text{mm}^2$ groß*.

b) Optische Anordnung für den Bereich 2 bis $27\ \mu$

Der Strahlengang ist aus Fig. 1 ersichtlich. Als Strahler dient ein Silitstab S , dessen Heizstrom durch Eisen-Wasserstoff-Widerstände stabilisiert wird. Die Modulation erfolgt unmittelbar hinter dem Strahler,

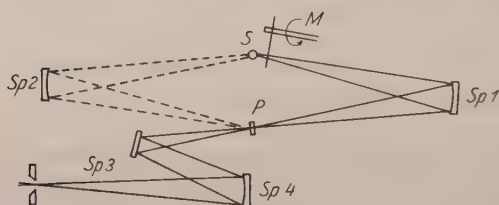


Fig. 1. Optische Anordnung zur Durchlässigkeits- bzw. Reflexionsmessung im Bereich 2 bis $27\ \mu$

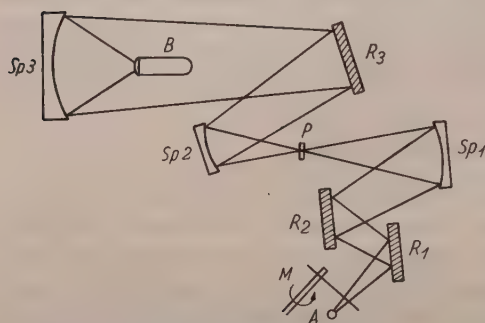


Fig. 2. Reststrahlenanordnung

einer Zwischenabbildung am Ort der Probe P . Bei Reflexionsmessungen reflektiert die Probe die von links über Spiegel Sp_2 einfallende Strahlung (in Fig. 1 gestrichelt eingezeichnet), die dann in den schon beschriebenen Strahlengang einmündet. Der Modulator M steht dabei links vom Strahler.

c) Optische Anordnung für den Bereich 52 bis $140\ \mu$

In diesem Bereich wird mit Reststrahlen gearbeitet. Als Strahlenquelle dient ein Auerstrumpf A (Fig. 2), der Modulator M besteht diesmal aus einer $4\ \text{mm}$ dicken NaCl-Platte. Es wird also praktisch nur Strahlung oberhalb von etwa $20\ \mu$ moduliert. R_1 , R_2 und R_3 sind drei Reststrahlplatten.

* Die Bolometer wurden von den Physikalisch-Technischen Werkstätten (Prof. HEIMANN), Wiesbaden-Dotzheim bezogen.

d) Optische Anordnung bei $\lambda \approx 350 \mu$

Zur spektralen Grobzerlegung dient hier die Rubenssche Quarzlinsenmethode. Der langwellige Strahlungsanteil einer Quarzquecksilberlampe wird durch eine Quarzlinse* zu einem reellen Zwischenbild am Ort der Probe *P* vereinigt und dann von einem kurzbrennweitigen Spiegel auf das Bolometer *B* konzentriert. Es befand sich stets ein Filter im Strahlengang, das im Abschnitt III näher beschrieben wird. Durch Anwendung des NaCl-Modulators wird der verbleibende Rest an falscher Strahlung weitgehend unwirksam gemacht.

e) Probengefäß

Das nun zu beschreibende Probengefäß gestattet eine Temperaturvariation der Probe von etwa -200°C bis $+300^\circ\text{C}$. Fig. 3a zeigt es im Längsschnitt. Es besteht aus einem eisernen Hohlzylinder *Z*, der oben mit einem als Mantelschliff ausgebildeten Deckel *D* versehen ist. *D* ist vakuumdicht aufgeschraubt. In den eisernen Kernschliff ist ein dünnwandiges Neusilberrohr *N* eingelötet, an dessen unterem Ende ein zylindrisches Gefäß *G* sitzt. *G* dient bei Tieftemperaturversuchen zur Aufnahme des Kühlmittels (flüssiger Stickstoff bzw. Mischung aus Spiritus und fester Kohlensäure). Bei Hochtemperaturversuchen wird angewärmtes Paraffin eingefüllt und mit Hilfe eines durch das Rohr *N* eingeführten elektrischen Heizstabes bis zu maximal $+300^\circ\text{C}$ aufgeheizt. Eine 10 mm dicke, unten gut plangeschliffene Kupferplatte *B* bildet den Boden des Gefäßes *G*. An diese Bodenplatte kann wahlweise der Absorptionsansatz *A* (in Fig. 3a eingezeichnet, vgl. Fig. 3b) oder der Reflexionsansatz *R* (Fig. 3c) festgeschraubt werden. Die Meß-

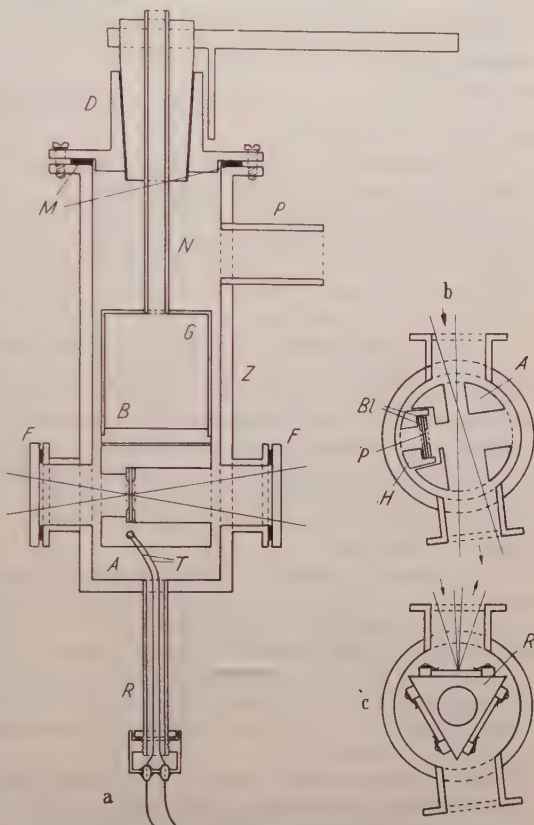


Fig. 3a—c. a Probengefäß im Längsschnitt. b Horizontaler Schnitt durch den Absorptionsansatz. c Horizontaler Schnitt durch den Reflexionsansatz

* Die Daten der Linse waren: Material: Kristalliner Quarz; Durchmesser: 10 cm; Brennweite bei $0,5 \mu$: 25 cm; Brennweite bei 300μ : 11,5 cm; Dicke am Rand: 5 mm; Dicke in der Mitte: 12 mm.

strahlung tritt durch die beiden Fenster F . Sie stehen einander nicht genau diametral gegenüber, wie die Fig. 3b und 3c zeigen. Das hat folgenden Grund: Bei Reflexionsmessungen verläuft der Strahlengang wie in Fig. 3c angedeutet, d.h. der Mittelstrahl des einfallenden Bündels ist gegen die Normalenrichtung um etwa 10° geneigt. Das zweite Fenster liegt genau in der Richtung dieses Mittelstrahls. Man kann so bei der Meßanordnung im Gebiet kurzer Wellen (Fig. 1) von Absorptions- zu Reflexionsmessungen übergehen, ohne die Stellung des Probengefäßes verändern zu müssen. Es werden lediglich die beiden Ansätze A und R ausgetauscht.

Beide Ansätze sind aus einem Kupferzylinder gefertigt, der den gleichen Durchmesser hat wie das Gefäß G .

Der Reflexionsansatz R hat die Form eines dreiseitigen Prismas. Auf den drei Seitenflächen werden zwei Kristallplatten ($30 \times 30 \text{ mm}^2$, 3 mm dick) und ein Vergleichsspiegel (aus V_2 A-Stahl) durch Kupferrähmchen gehalten und federnd angedrückt. Durch eine hier nicht gezeichnete Justiervorrichtung kann erreicht werden, daß nicht nur die Richtungen der Oberflächennormalen der beiden Kristalle und des Spiegels nach Drehung um je 120° zusammenfallen, sondern auch die Flächen selbst möglichst genau in einer Ebene liegen.

Der Absorptionsansatz A ist ein Kupferzylinder mit zwei aufeinander senkrecht stehenden Durchbohrungen von ovalem Querschnitt (Fig. 3b). Die Probe P liegt zwischen zwei Blendenscheiben Bl , die an dem (zum Auswechseln der Probe herausnehmbaren) Teil H des Absorptionsansatzes befestigt sind. Die Blendenöffnung hat eine Größe von $20 \times 6 \text{ mm}^2$. In Fig. 3b ist der Absorptionsansatz so gezeichnet, daß die Meßstrahlung ungehindert durchgehen kann. Nach Drehung um 90° im Uhrzeigersinn befindet sich die Probe am Ort des Zwischenbildes. Die Konstruktion des Probengefäßes gestattet es also, bei jeder Temperatur alternierende Messungen vorzunehmen.

Als Fenster F dienen im Gebiet 2 bis 27μ zwei KBr-Platten von je 6 mm Dicke, im Gebiet über 52μ zwei Lupolenscheiben* von je 1 mm Dicke. Sie werden nach dem Auspumpen des Probengefäßes (dreistufige Hg-Diffusionspumpe) lediglich durch den äußeren Luftdruck festgehalten.

Am Boden des Probengefäßes ist ein dünnwandiges Rohr R angelötet, das am unteren Ende ein Ansatzstück mit zwei glasisolierten Durchführungen für das Thermoelement T trägt. Seine Lötstelle ist isoliert in eine 20 mm tiefe Bohrung von A bzw. R eingeführt.

Die Innenwand von Z und die Außenwand von G sind durch Auflage von 0,1 mm dickem Feinsilberblech verspiegelt, um Strahlungsverluste klein zu halten.

Teils durch Rechnung, teils durch Experiment ergab es sich, daß die Proben stets die gleiche Temperatur wie die Wände haben.

f) Herstellung der Dünnschliffe

Um die Durchlässigkeit von LiF bis möglichst nahe an die Eigenschwingung heran messen zu können, mußte nach einer Methode zur Herstellung dünner Kristallplatten gesucht werden. Es bot sich das von CZERNY² entwickelte Schabeverfahren an, das sich vor allem beim Steinsalz bewährt hat. Es zeigte sich, daß LiF wegen seiner größeren Sprödigkeit schlechter zu bearbeiten ist als Steinsalz. Trotzdem gelang

* Lupolen ist das eingetragene Warenzeichen eines von der Badischen Anilin- & Sodafabrik hergestellten Kunststoffes (Hochdruck-Polyäthylen).

² CZERNY, M.: Z. Physik **65**, 600 (1930).

es — wenn auch mit einiger Mühe — Schichten von $12 \times 20 \text{ mm}^2$ bis herunter zu einer Dicke von etwa 50μ herzustellen. Durch das Verfahren bedingt, war eine Oberfläche der Probe stets einwandfrei poliert. Aber auch die Qualität der anderen war bei vorsichtigem Schaben und leichtem Nachpolieren kaum geringer.

Die Probendicke wurde auf interferenzoptischem Wege gemessen. Es zeigte sich, daß die durch Dünnschaben hergestellten Präparate eine sehr gleichmäßige Dicke aufwiesen. Sie betrug bei zwei Proben (als Mittelwert aus je 9 Einzelmessungen)

$$d_1 = (40,0 \pm 0,5) \mu,$$

$$d_2 = (60,1 \pm 0,3) \mu.$$

Diese beiden Proben wurden bei den im übernächsten Abschnitt beschriebenen Messungen benutzt.

II. Formeln zur Berechnung von n und k aus R und D

Unter Berücksichtigung der Mehrfachreflexion, der Interferenz der mehrfach reflektierten Wellen und der Anomalie der Phasensprünge wurde für die Durchlässigkeit D einer planparallelen Platte der Dicke d aus einem Stoff mit den optischen Konstanten n und k bei senkrechtem Einfall monochromatischer Strahlung der Wellenlänge λ folgende Formel abgeleitet:

$$\left. \begin{aligned} D &= D' \frac{(1 - R')^2 + 4 R' \sin^2 \psi}{(1 - R' D')^2 + 4 R' D' \sin^2 (\alpha + \psi)}, \\ D' &= \exp \left(-4 \pi k \frac{d}{\lambda} \right), \quad R' = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}, \quad \alpha = 2 \pi n \frac{d}{\lambda}, \\ &\quad \operatorname{tg} \psi = \frac{2k}{n^2 + k^2 - 1}. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Auf Einzelheiten der Rechnung soll hier nicht näher eingegangen werden.

Analog wurde für das Reflexionsvermögen R die Formel

$$R = R' \frac{(1 - D')^2 + 4 D' \sin^2 \alpha}{(1 - R' D')^2 + 4 R' D' \sin^2 (\alpha + \psi)} \quad (2)$$

abgeleitet mit denselben Bedeutungen von R' , D' , α und ψ . Bemerkenswert scheint die große Ähnlichkeit der beiden Formeln. Ersichtlich geht (1) in (2) über und umgekehrt, wenn R' und D' einerseits, α und ψ andererseits ausgetauscht werden*. Beide Formeln sind in der Literatur

* Diese Vertauschungsbeziehung ist zunächst rein formaler Natur. Ein physikalischer Hintergrund ist vorerst nicht ersichtlich. D und R sind diejenigen Größen, die allgemein unmittelbar gemessen werden können, während D' und R' eine mehr theoretische Bedeutung besitzen. Sie sind in einfacher Weise mit den optischen Konstanten verknüpft, einer unmittelbaren Messung aber nur unter besonderen Voraussetzungen zugänglich.

schon mehrfach angeführt worden^{2,3,4}, jedoch in einer solchen Bezeichnungsweise, daß die Vertauschungsbeziehung nicht ohne weiteres erkenntlich war.

Für $k \rightarrow 0$ ergibt sich aus (1) und (2)

$$D = \frac{(1 - R')^2}{(1 - R')^2 + 4 R' \sin^2 \alpha} ,$$

$$R = \frac{4 R' \sin^2 \alpha}{(1 - R')^2 + 4 R' \sin^2 \alpha} .$$

Ersichtlich ist dann $D + R = 1$, wie es sein muß.

Zur Berechnung von k aus Durchlässigkeitsmessungen ist es in vielen Fällen möglich, die Gl. (1) wesentlich zu vereinfachen. Je nach den vorliegenden Größenverhältnissen kann oft mit der Formel

$$\exp\left(4\pi k \frac{d}{\lambda}\right) = \frac{(1 - R')^2 + 4 R' \sin^2 \psi}{D} \quad (3)$$

oder mit der Formel

$$\exp\left(4\pi k \frac{d}{\lambda}\right) = \frac{(1 - R')^2}{D} = 10^{-5,457 k \frac{d}{\lambda}} \quad (4)$$

gearbeitet werden. In der vorliegenden Arbeit wurde je nach den Erfordernissen (3) oder (4) angewendet.

III. Messungen und Meßergebnisse

a) Messungen im Gebiet 4,5 bis 27 μ

In diesem Wellenlängenbereich erfolgte die spektrale Zerlegung durch ein KBr-Prisma. Die Brechungsindizes von KBr entstammen neuen Messungen⁵. Sie liegen gegenüber älteren Messungen systematisch höher. Dies verursacht eine Wellenlängenverschiebung um etwa 0,5 μ im Bereich 6 bis 18 μ und erklärt weitgehend die kleinen systematischen Abweichungen zwischen den Ergebnissen der vorliegenden Reflexions- und Absorptionsmessungen und denjenigen der Messungen von KORTH⁶ und HOHLS⁷.

α) Reflexionsmessungen an LiF und NaF. Das Reflexionsvermögen von LiF und NaF wurde durch Vergleich mit einem Spiegel aus V₂A-Stahl gemessen. Die Oberflächen der beiden Proben waren gut poliert.

³ BLACKMAN, M.: Phil. Mag. **18**, 271 (1934).

⁴ BARNES, R.B., u. M. CZERNY: Phys. Rev. **38** (II), 338 (1931).

⁵ STEPHENS, R.E., E.K. PLYLER, W.S. RODNEY u. R.J. SPINDLER: J. Opt. Soc. Amer. **43**, 110 (1953).

⁶ KORTH, K.: Göttinger Nachr., math.-phys. Kl. **1932**, 576.

⁷ HOHLS, H.W.: Ann. Physik **29**, 433 (1937).

Es wurden Isothermen aufgenommen bei den Temperaturen -196°C , $+20^{\circ}\text{C}$ und $+300^{\circ}\text{C}$ (Fig. 4) *.

Man sieht, daß die Nebenmaxima bei $17,5\ \mu$ (LiF) und $25\ \mu$ (NaF) richtig wiedergegeben werden. Zum Vergleich ist der von HOHLs bei Zimmertemperatur gemessene Verlauf von R_{LiF} und R_{NaF} gestrichelt eingezeichnet. Durch Abkühlung auf -196°C erhöht sich im ganzen Bereich die Reflexion gleichmäßig, wobei das Nebenmaximum keinesfalls schärfer hervortritt. Vielmehr tritt eine geringe Verschiebung des Sattelpunktes nach kürzeren Wellen auf. Die Temperaturerhöhung auf

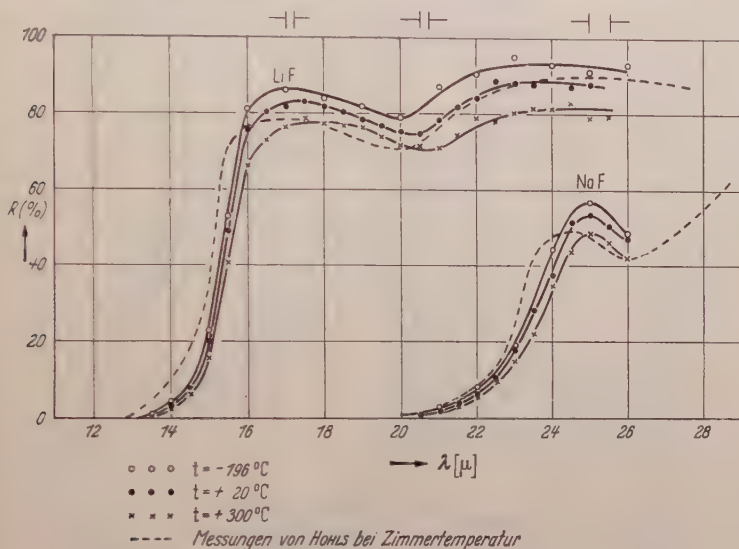


Fig. 4. Reflexionsvermögen von LiF und NaF bei verschiedenen Temperaturen

$+300^{\circ}\text{C}$ bewirkt die gleichen Effekte in umgekehrter Richtung. Dies steht in Einklang mit dem Befund von KORTH, der jedoch bei Abkühlung auf -186°C einen Anstieg des Reflexionsvermögens bis zu annähernd 100% bei $\lambda = 26\ \mu$ feststellte, während in vorliegender Arbeit bei -196°C nur etwa 94% gemessen wurden **.

β) Durchlässigkeitsmessungen an LiF und NaF. Um den Extinktionskoeffizienten k in einem größeren Wellenlängenbereich mit gleichbleibender Genauigkeit ausrechnen zu können, mußten jeweils mehrere Kristalldicken benutzt werden. Das Ergebnis der Messungen an LiF

* Das Reflexionsvermögen des $V_2\text{A}$ -Vergleichsspiegels ist temperaturabhängig. Dies wurde bei der Berechnung von R_{LiF} und R_{NaF} berücksichtigt.

** Dazu ist zu sagen, daß in beiden Fällen ein gewisser Grad von Unsicherheit durch die einsetzende Prismenabsorption entstand.

zeigt Fig. 5. Aufgetragen ist die Durchlässigkeit D als Funktion der Wellenlänge bei vier Temperaturen und fünf Schichtdicken.

In Fig. 6 ist der Extinktionskoeffizient k als Funktion der Wellenlänge bei den vier Temperaturen aufgetragen (LiF). Die Kurvenpunkte

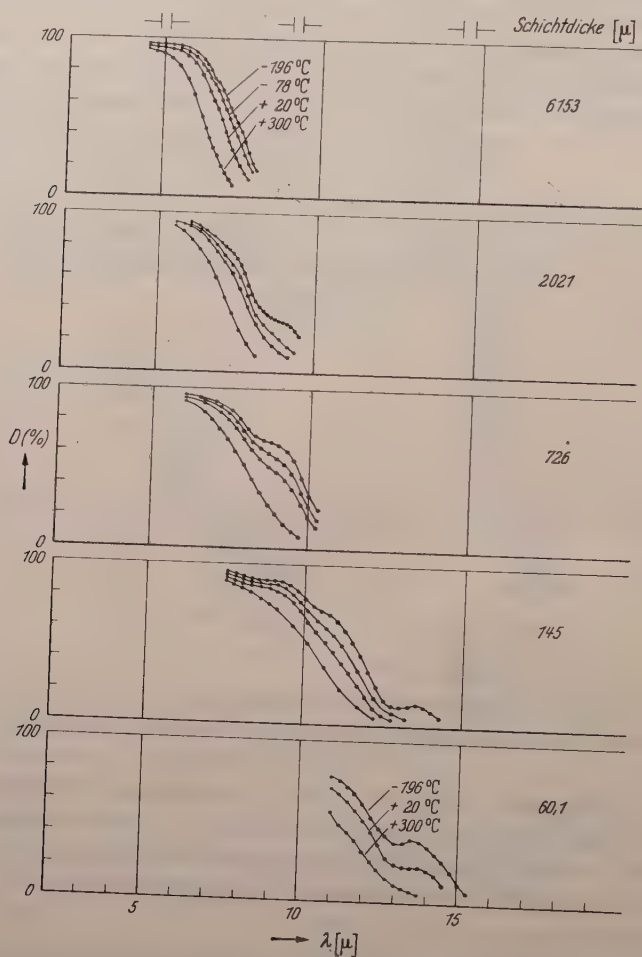


Fig. 5. Durchlässigkeit von LiF bei verschiedenen Temperaturen und Schichtdicken

wurden aus den Durchlässigkeitsmessungen (Fig. 5) unter Benutzung der Formeln (3) und (4) aus Abschnitt II berechnet und stellen Mittelwerte dar in dem Sinne, daß die mittleren Partien der Durchlässigkeitskurven höher bewertet wurden als die Randpartien. Man sieht, daß bei den Wellenlängen 8,0, 10,3 und 12,7 μ schwache Nebenmaxima liegen, die mit fallender Temperatur deutlicher werden. Das Maximum bei

13 μ ist schon von HOHLS festgestellt worden. Der übrige Absorptionsverlauf wurde von HOHLS in Form einer Tabelle dargestellt (dort Absorptionskonstante K in mm^{-1}). Rechnet man seine Tabellenwerte mittels $k = \frac{\lambda}{4\pi} K$ um, so erhält man die in Fig. 6 gestrichelt eingezeichnete Extinktionskurve. Man sieht, daß bis auf eine geringe Wellen-

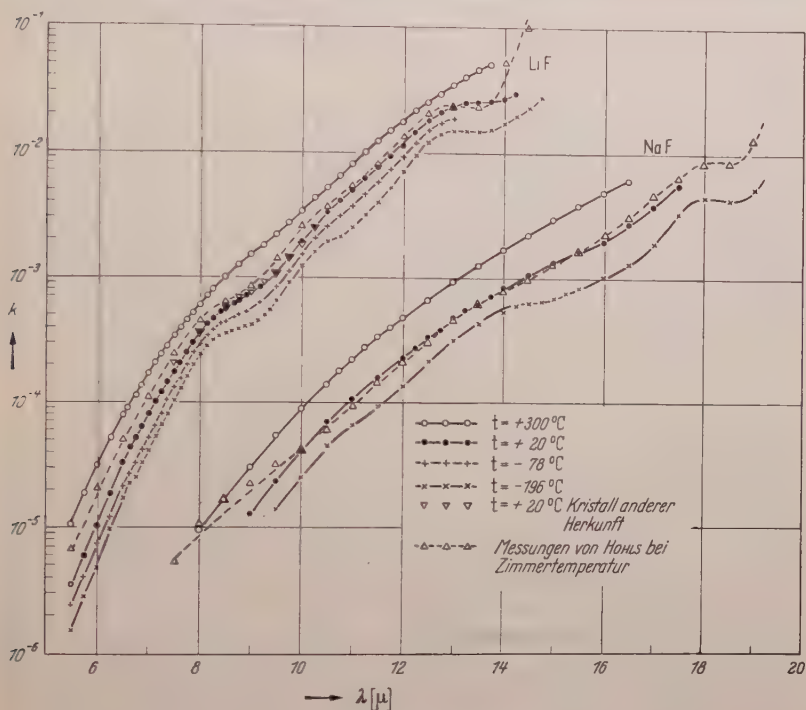


Fig. 6. Extinktionskoeffizient von LiF und NaF bei verschiedenen Temperaturen. k ist als dimensionslose Größe nach Formel (1) definiert

längenverschiebung nicht nur das relativ starke Maximum bei 13 μ , sondern auch die beiden Anomalien bei 8,0 und 10,3 μ gut wiedergegeben werden.

Um noch einen weiteren Vergleich zu haben, wurde die Durchlässigkeit eines LiF-Kristalles anderer Herkunft (aus altem Institutsbestand, die übrigen Kristalle wurden von der Firma *B. Halle Nachfolger* aus Material von der Firma *Leitz* angefertigt) bei Zimmertemperatur im Bereich von 7,5 bis 10,25 μ gemessen. Die daraus berechneten Extinktionskoeffizienten sind als Dreiecke in Fig. 6 eingetragen. Sie passen sich ersichtlich dem Verlauf der +20° C-Isotherme an, bestätigen also die Anomalie bei 8,0 μ .

Die Messungen an NaF verliefen analog. Es wurden hier nur drei Isothermen aufgenommen. In Fig. 6 sieht man, daß auch bei NaF Anomalien auftreten, und zwar zusätzlich zu einem auch von HOHLS gefundenen Maximum bei $18\ \mu$ ein zweites schwächeres bei etwa $13,5\ \mu$. Dieses macht sich bei tiefer Temperatur noch relativ stark, bei Zimmertemperatur nur noch andeutungsweise bemerkbar. Die gestrichelte Kurve stammt wieder von HOHLS. Die Übereinstimmung ist größtenteils gut, sogar die schwache Anomalie zwischen 12 und $15\ \mu$ ist angedeutet.

b) Durchlässigkeitsmessungen an LiF im Gebiet um $2,8\ \mu$

Eine bei $2,84\ \mu$ festgestellte Absorptionsbande zeigte entgegengesetztes Temperaturverhalten. Sie wird im Gegensatz zu den Anomalien bei längeren Wellen bei Erwärmung ausgeprägter. Dies scheint interessant im Hinblick darauf, daß diese Bande mit dem Einschluß von Fremdstoffen in das Kristallgitter in Verbindung gebracht wird. BALLARD, COMBES und MCCARTHY⁸ haben festgestellt, daß sie nicht auftritt, wenn der Kristall im Vakuum aus der Schmelze gezogen wurde.

c) Durchlässigkeitsmessungen an LiF im Gebiet 52 bis $350\ \mu$

In einer kürzlich vom Verfasser gemeinsam mit L. GENZEL veröffentlichten Arbeit⁹ wurde die Durchlässigkeit von LiF bei Zimmertemperatur im Bereich von 70 bis $1100\ \mu$ mit einem Vakuum-Gitterspektrometer gemessen und daraus n und k nach der Methode der Mehrfach-Interferenzen an dünnen Platten bestimmt. Dabei zeigte sich, daß k von der Eigenschwingung aus nach längeren Wellen nicht gleichmäßig abfällt, sondern zwei Haltepunkte durchläuft, und zwar in den Bereichen 70 bis $130\ \mu$ und 300 bis $1000\ \mu$. Aus apparativen Gründen konnten die Messungen mit dem Gitterspektrometer nur bei Zimmertemperatur durchgeführt werden.

Um einen Überblick über die Temperaturabhängigkeit von k zu erhalten, wurde in der vorliegenden Arbeit die Durchlässigkeit von LiF-Platten in Abhängigkeit von der Temperatur bei sechs Wellenlängen gemessen, wobei zur spektralen Zerlegung der Strahlung die Reststrahlen- bzw. Quarzlin senmethode von RUBENS Anwendung fand. Diese Zerlegungsmethoden filtern nur relativ breite Spektralgebiete aus. Sie können daher nur dann zu richtigen Ergebnissen führen, wenn sich in diesen Gebieten die Durchlässigkeit nur wenig ändert. Dies trifft beim LiF gerade in den Bereichen zu, in denen die genannten Zerlegungsmethoden angewendet werden können.

⁸ BALLARD, S. S., L. S. COMBES u. K. A. MCCARTHY: J. Opt. Soc. Amer. **41**, 772 (1951).

⁹ GENZEL, L., u. M. KLIER: Z. Physik **144**, 25 (1956).

Als Reststrahlsubstanzen wurden benutzt NaCl, KCl, KBr, TiCl und TiBr. Ihre Reststrahlwellenlängen lagen bei 52, 63,4, 81,8, 105 und 140 μ *.

Die Quarzlinsenmethode sondert im langwelligen Ultrarot zwei Strahlenkomplexe mit den mittleren Wellenlängen 220 und 340 μ aus, wenn eine Quarz-Quecksilberlampe als Strahlenquelle verwendet wird. Bei der hier benutzten Anordnung wurde ein Filter in den Strahlengang gebracht, das den kürzerwelligen Anteil beseitigte. Es bestand aus einer 4 mm dicken Platte aus geschmolzenem Quarz, welche einseitig mit einer Paraffin-Ruß-Mischung überzogen war. Der Anstieg der Durchlässigkeit dieses Filters erfolgt zwischen 250 und 350 μ . Als mittlere Wellenlänge des verbleibenden längerwelligen Strahlungsanteils wurde 350 μ angenommen. Bei den Reststrahlen- und Quarzlinsenmessungen waren als ständige Filter im Strahlengang: 0,5 mm kristalliner Quarz (Bolometerfenster) und 2×1 mm Lupolen (Fenster des Probengefäßes). Dieser Kunststoff besitzt eine nach längeren Wellen ziemlich rasch ansteigende Durchlässigkeit (bei 52 μ etwa 70% in 1 mm Dicke) und beseitigt kurzwellige falsche Strahlung im wesentlichen durch diffuse Streuung.

Es wurden Isochromaten aufgenommen, und zwar bei steigender und fallender Temperatur. Dabei änderte sich die Durchlässigkeit der LiF-Schichten so stark, daß es unmöglich war, mit einer Schicht im gesamten Temperaturbereich von -196°C bis $+300^{\circ}\text{C}$ zu arbeiten. Bei den Reststrahlmessungen war die Absorption des LiF bei hohen Temperaturen so groß, daß nur noch die dünnste Schicht ($d = 40 \mu$) hinreichende Durchlässigkeit besaß. Bei tieferen Temperaturen mußten nacheinander größere Schichtdicken benutzt werden, um mit gleicher Genauigkeit die Extinktionskoeffizienten k berechnen zu können. Es ergab sich stets eine gute Übereinstimmung in den Überschneidungsgebieten. Bei den Messungen mit der Quarzlinsenmethode erreichte die Durchlässigkeit der 6 mm-Probe schon bei -153°C so hohe Werte, daß k für noch tiefere Temperaturen nicht mehr berechnet werden konnte. Eine dickere Probe konnte aus apparativen Gründen nicht eingesetzt werden.

Fig. 7 zeigt eine Gesamtdarstellung der Meßergebnisse. Es ist der Extinktionskoeffizient k als Funktion der Temperatur in einem doppelt-logarithmischen System aufgetragen. Bei der Umrechnung $D \rightarrow k$ wurde der Brechungsindex für alle Wellenlängen und Temperaturen zu $n = 3,07$ angenommen^{7,9}. Der mittlere Fehler, mit dem ein einzelner Meßpunkt behaftet ist, beträgt etwa 5 bis 10%.

In Fig. 8 sind drei Isothermen gezeichnet (-196°C , $+20^{\circ}\text{C}$ und $+300^{\circ}\text{C}$). Die markierten Kurvenpunkte sind der Fig. 7 bei den drei

* Da die beiden letzten Substanzen nicht in Form großer Platten zur Verfügung standen, wurde mit Aufdampfschichten gearbeitet, deren Reststrahlwellenlängen gegenüber denen der kompakten Stoffe nach längeren Wellen verschoben waren.

genannten Temperaturen entnommen, und zwar unter Zugrundelegung der durch die Meßpunkte gelegten Geraden. Sie stellen also bereits gemittelte Werte dar. Zum Vergleich ist der mit dem Vakuum-Gitterspektrometer bei Zimmertemperatur gemessene Absorptionsverlauf⁹

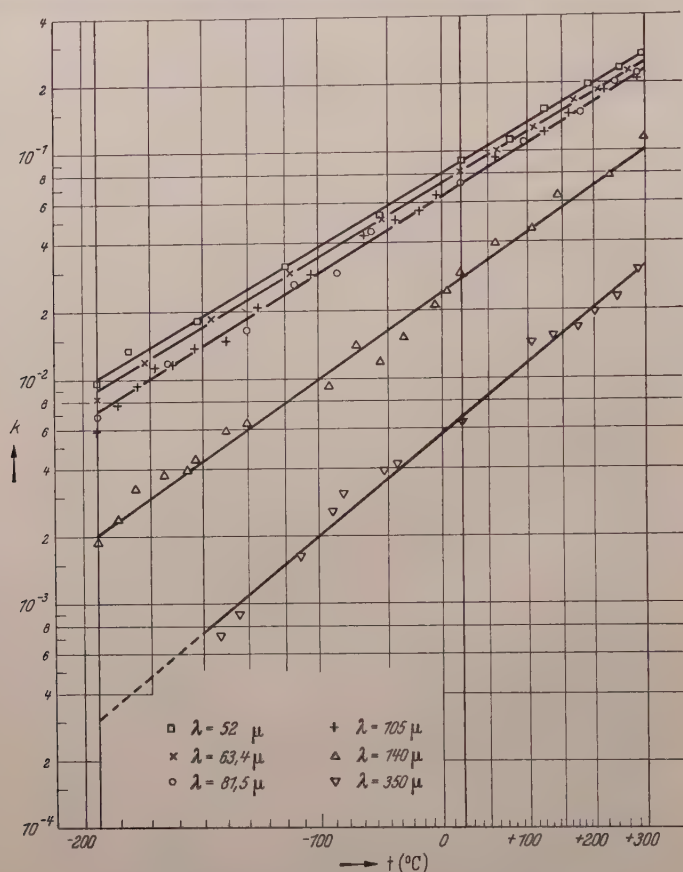


Fig. 7. Isochromaten von LiF jenseits der Eigenschwingung

gestrichelt eingezeichnet. Die beiden Dreiecke bei 39 und 41 μ entstammen Messungen von HOHLS, die Quadrate sind mit $n=3,07$ aus Durchlässigkeitsmessungen von McCUBBIN und SINTON¹⁰ berechnet. Die strichpunktlierte Linie ist einer Arbeit von KOCH¹¹ entnommen.

Die Übereinstimmung der in vorliegender Arbeit durchgeführten Messungen mit den Gittermessungen bei Zimmertemperatur ist nicht

¹⁰ McCUBBIN, T. K., u. W. M. SINTON: J. Opt. Soc. Amer. **40**, 537 (1950).

¹¹ KOCH, B.: Ann. Physik **33**, 335 (1938).

sehr gut, die ersteren liegen systematisch tiefer. Ein Grund für die Abweichung ist bisher nicht ersichtlich. Jedoch wird im wesentlichen das Nebenmaximum bei $110\ \mu$ bestätigt.

Um einen Gesamtüberblick über das heute bekannte Absorptionsverhalten des LiF im Wellenlängenbereich 5 bis $1200\ \mu$ und im Tempe-

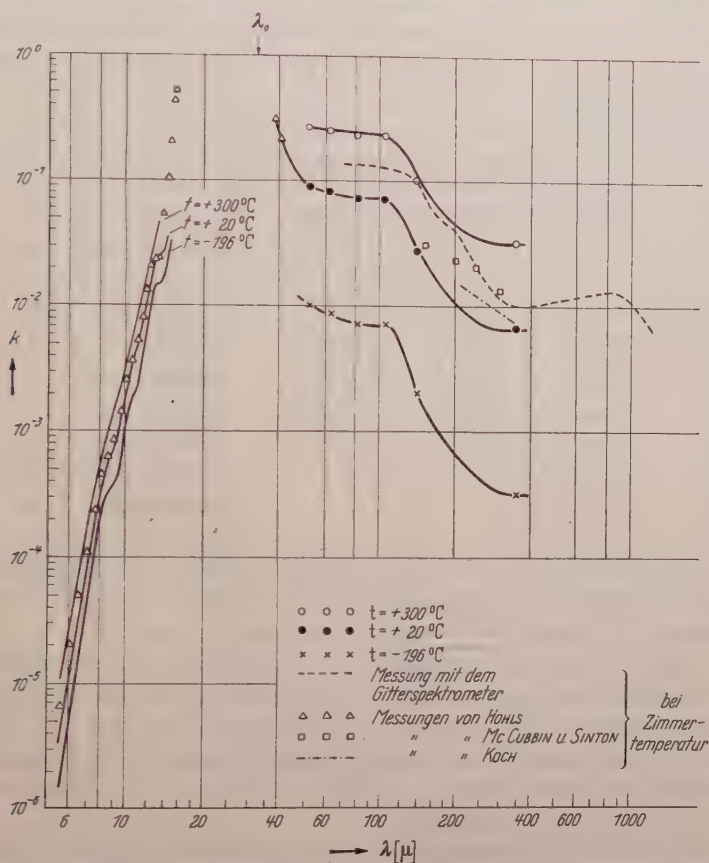


Fig. 8. Gesamtverlauf des Extinktionskoeffizienten von LiF bei verschiedenen Temperaturen

raturbereich -196°C bis $+300^\circ\text{C}$ zu geben, wurden in Fig. 8 die drei entsprechenden Isothermen im Kurzwelligen dazugezeichnet (vgl. Fig. 6).

Auffallend ist, daß der Temperatureffekt auf der langwelligen Seite der Eigenschwingung um eine Größenordnung stärker ist als auf der kurzwelligen. Dies könnte zu einem kleinen Teil als Folge einer Verschiebung der Hauptabsorptionsbande nach kürzeren Wellen mit sinkender Temperatur angesehen werden. Parallel dazu geht die geringe Verschiebung der Reflexionsbande nach kürzeren Wellen.

Bei NaCl und KCl scheint ein derartiger Effekt nicht vorhanden zu sein. RUBENS und HERTZ¹² haben bei diesen Stoffen zu beiden Seiten der Eigenschwingung eine annähernd gleich große Temperaturabhängigkeit von k gefunden. Da die genannten Autoren nur bei zwei Wellenlängen gemessen haben und weitere Vergleichsmöglichkeiten nicht vorliegen, scheint es verfrüht, der Frage nach der Ursache des abweichenden Temperaturverhaltens von LiF weiter nachzugehen. Dazu müßten vor allem Absorptionsmessungen in unmittelbarer Umgebung der Eigenschwingung vorliegen.

Während die Nebenabsorptionsstellen auf der kurzwelligen Seite mit steigender Temperatur schwächer werden, bleibt das 110 μ -Nebenmaxi-

mum auch bei $+300^\circ\text{C}$ deutlich ausgeprägt. Die plausible Annahme, daß die Nebenabsorptionsstellen mit steigender Temperatur breiter und flacher werden, erklärt den Befund nur auf der kurzwelligen Seite. Um die Meßergebnisse auf der langwelligen Seite verstehen zu können, muß

Tabelle 1. Absorptionsstellen von LiF und NaF

LiF		NaF	
λ [μ]	ν [cm^{-1}]	λ [μ]	ν [cm^{-1}]
8,0	1250	13,5	741
10,3	971	18	556
12,7	788	29	345
19	527	34	294
26	385	40,6	246
<u>32,6</u>	<u>307</u>		
110	91,0		
900	11,1		

man dagegen unterstellen, daß die 110 μ -Nebenabsorption mit steigender Temperatur intensiver wird, da trotz Verschiebung der Kurve im logarithmischen System ihre Gestalt nahezu erhalten bleibt.

BARNES¹³ hat an LiF- und NaF-Aufdampfschichten in der Nähe der Haupteigenschwingungen noch je zwei weitere Absorptionsnebenmaxima gemessen, und zwar bei 19 und 26 μ (LiF) und bei 29 und 35 μ (NaF). Zusammen mit den in der vorliegenden Arbeit gefundenen Nebenmaxima ergibt sich nun folgende Zusammenstellung (die Haupteigenschwingungen sind unterstrichen) (s. Tabelle 1).

In Fig. 8 fällt auf, daß die Absorption schon bei 16 μ (nach HOHLS) sehr hohe Werte annimmt, während die Hauptresonanzstelle erst bei 32,6 μ liegt. Dies wird offenbar durch die von BARNES gefundenen Nebenmaxima bei 19 und 26 μ verursacht. MENTZEL¹⁴ und CARTWRIGHT und CZERNY¹⁵ haben bei mehreren Alkalihalogeniden den Absorptionsverlauf als Funktion von λ/λ_0 aufgetragen (λ_0 = Eigenwellenlänge). Es zeigte sich, daß die k -Kurven nahezu zusammenfallen. HOHLS

¹² RUBENS, H., u. G. HERTZ: Berl. Ber. **1912**, 256.

¹³ BARNES, R. B.: Z. Physik **75**, 723 (1932).

¹⁴ MENTZEL, A.: Z. Physik **88**, 178 (1934).

¹⁵ CARTWRIGHT, H. C., u. M. CZERNY: Z. Physik **90**, 457 (1934).

fügte noch die Kurven von LiF und NaF hinzu. Bei sonst ähnlichem Kurvenverlauf lag die LiF-Kurve systematisch höher. Es scheint bemerkenswert, daß die Übereinstimmung gut wird, wenn die LiF-Kurve als Funktion von λ/λ_N aufgetragen wird, wobei λ_N die Wellenlänge des ersten kurzwelligen Nebenmaximums bedeutet (26μ). Möglicherweise ist jene Nebenabsorption so stark, daß der kurzwellige k -Anstieg im wesentlichen von ihr und nicht von der Hauptabsorption verursacht wird.

Die vorliegende Arbeit wurde im Physikalischen Institut der Universität Frankfurt a. M. ausgeführt. Herrn Professor Dr. M. CZERNY möchte ich auch an dieser Stelle für Anregung, wertvolle Ratschläge und stete Unterstützung bei ihrer Durchführung verbindlichst danken. Ferner habe ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft für ein Stipendium und Geldmittel für apparative Anschaffungen, der Firma Leitz für Überlassung von Untersuchungsmaterial zu danken.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Heidelberg

Eine Extremaleigenschaft der freien Energie

Von

H. KOPPE

(Eingegangen am 5. November 1957)

Es wird bewiesen, daß man eine obere Schranke für die freie Energie erhält, wenn man in der Zustandssumme die Eigenwerte des Hamilton-Operators durch die Diagonalelemente in einer beliebigen Darstellung ersetzt.

Es sei \mathbf{H} ein hermitescher Operator mit den Eigenwerten ε_n , Φ_n ein beliebiges vollständiges Orthogonalsystem, und $\eta_n = (\Phi_n, \mathbf{H} \Phi_n)$. Dann gilt:

$$F = -kT \log \sum_n e^{-\frac{\varepsilon_n}{kT}} \leq -kT \log \sum_n e^{-\frac{\eta_n}{kT}}. \quad (1)$$

Man erhält also eine obere Schranke für die freie Energie, wenn man in der Zustandssumme die Eigenwerte durch die Diagonalelemente in einer beliebigen Darstellung ersetzt.

Das Merkwürdige an diesem Theorem ist, daß es, wie gleich gezeigt werden wird, keinesfalls trivial ist, daß es aber andererseits implizite mehrfach benutzt, und dabei offenbar als selbstverständlich vorausgesetzt worden ist¹. Da es nicht bekannt zu sein scheint, soll im folgenden ein kurzer Beweis gegeben werden.

Man kann (1) auch unmittelbar als Ungleichung für die Zustandssumme schreiben:

$$Z(\tau) = \sum e^{-\tau \varepsilon_n} \geq \sum e^{-\tau \eta_n}. \quad (2)$$

Ordnen wir die ε_n und die η_n der Größe nach, dann ist bekannt, daß $\varepsilon_0 \leq \eta_0$ ist. Für großes τ (niedrige Temperatur) ist die Ungleichung (2) daher plausibel. Die anderen η_n liegen aber teils über, teils unter den entsprechenden ε_n , die Glieder in der rechten Summe sind also teils kleiner, teils größer als die entsprechenden Glieder in der Zustandssumme. Da bei kleinem τ viele Glieder zu den Summen beitragen, ist in diesem Falle die Ungleichung durchaus nicht mehr selbstverständlich.

¹ Ein Beispiel dafür ist die Bardeensche Theorie der Supraleitung. (J. BARDEEN, L. N. COOPER u. J. R. SCHRIEFFER: University of Illinois, Technical Report Nr. 9, 1957.) Hier wird zunächst ein vollständiges Orthogonalsystem konstruiert, welches von einer willkürlichen Funktion $h(k)$ abhängt, und dann h als Funktion von T so bestimmt, daß die freie Energie ein Minimum wird.

Wir beweisen die Gl. (2). Die den Eigenfunktionen ϕ_n entsprechenden Projektionsoperatoren seien \mathbf{P}_n . Dann ist

$$\Psi = \sum e^{-\tau \eta_n} = \sum e^{-\tau \text{Spur}(\mathbf{P}_n \mathbf{H})}. \quad (3)$$

Wir betten jetzt das System \mathbf{P}_n in ein von einem Parameter λ abhängiges Feld $\mathbf{P}_n(\lambda)$ ein:

$$\mathbf{P}_n(\lambda) = e^{i\lambda \mathbf{R}} \mathbf{P}_n e^{-i\lambda \mathbf{R}}. \quad (4)$$

Dabei ist \mathbf{R} ein beliebiger hermitischer Operator. Wir halten \mathbf{R} zunächst fest. Dann wird Ψ eine Funktion von λ . Um (2) zu beweisen, genügt es, zu zeigen, daß

$$\left. \begin{array}{l} \frac{\partial \Psi}{\partial \lambda} \neq 0 \\ \text{für wenigstens ein } \mathbf{R}, \text{ wenn } [\mathbf{P}_n, \mathbf{H}] \neq 0 \\ \text{für wenigstens ein } \mathbf{P}_n, \end{array} \right\} \quad (5)$$

$$\frac{\partial \Psi}{\partial \lambda} = 0; \quad \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \lambda^2} \leq 0 \quad \text{für alle } \mathbf{R} \text{ und } [\mathbf{H}, \mathbf{P}_n] = 0. \quad (6)$$

Daß Ψ für $[\mathbf{H}, \mathbf{P}_n] = 0$ stationär wird, liegt natürlich daran, daß dann die η_n stationär sind. Wesentlich ist es, zu zeigen, daß ein Maximum vorliegt.

Aus (4) folgt:

$$\frac{\partial \mathbf{P}_n}{\partial \lambda} = i [\mathbf{R}, \mathbf{P}_n], \quad (7a)$$

$$\frac{\partial^2 \mathbf{P}_n}{\partial \lambda^2} = - [\mathbf{R}, [\mathbf{R}, \mathbf{P}_n]]. \quad (7b)$$

Dann ist

$$\frac{\partial \Psi}{\partial \lambda} = -\tau \sum \text{Spur} \left(\frac{\partial \mathbf{P}_n}{\partial \lambda} \mathbf{H} \right) e^{-\tau \eta_n}.$$

Mit

$$\mathbf{W} = \sum \mathbf{P}_n e^{-\tau \eta_n} \quad (8)$$

läßt sich das unter Berücksichtigung von (7a) und $\text{Spur}[A, B]C = \text{Spur} A [B, C]$ schreiben

$$\frac{\partial \Psi}{\partial \lambda} = -i \tau \text{Spur} \mathbf{R} [\mathbf{W}, \mathbf{H}]. \quad (9)$$

Nun ist entweder $[\mathbf{W}, \mathbf{H}] \neq 0$, dann kann man in (9) für \mathbf{R} den hermitischen Operator $\mathbf{A} = i[\mathbf{W}, \mathbf{H}]$ einsetzen, und es ist $\frac{\partial \Psi}{\partial \lambda} \neq 0$ wegen $\text{Spur} \mathbf{A}^* \mathbf{A} \neq 0$ für $\mathbf{A} \neq 0$. Oder es ist $[\mathbf{W}, \mathbf{H}] = 0$. Dann kommutiert \mathbf{H} auch mit den \mathbf{P}_n . Denn diese sind nach (8) gerade die Projektionsoperatoren, die in der Spektralzerlegung von \mathbf{W} auftreten, und daher Funktionen von \mathbf{W} .

Damit ist (5) und der erste Teil von (6) bewiesen.

Wir nehmen jetzt an, daß $[\mathbf{P}_n, \mathbf{H}] = 0$; d.h. die \mathbf{P}_n sind die zu \mathbf{H} gehörigen Projektionsoperatoren, und es ist $\mathbf{W} = \exp(-\tau \mathbf{H})$ und $\Psi = Z$. Dann ist

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \lambda^2} &= -\tau \sum \text{Spur} \left(\frac{\partial^2 \mathbf{P}_n}{\partial \lambda^2} \mathbf{H} \right) e^{-\tau \eta_n} = \tau \text{Spur} [\mathbf{R}, [\mathbf{R}, \mathbf{W}]] \mathbf{H} \\ &= \tau \text{Spur} (\mathbf{R}^2 \mathbf{W} \mathbf{H} - \mathbf{R} \mathbf{W} \mathbf{R} \mathbf{H} - \mathbf{R} \mathbf{H} \mathbf{R} \mathbf{W} + \mathbf{R} \mathbf{H} \mathbf{W} \mathbf{R}). \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Wir schreiben den letzten Ausdruck in Matricelemente aus, wobei wir eine in \mathbf{W} und \mathbf{H} diagonale Darstellung benutzen:

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \lambda^2} = - \sum_{i,k} (\tau \varepsilon_i - \tau \varepsilon_k) (e^{-\tau \varepsilon_k} - e^{-\tau \varepsilon_i}) |R_{ik}|^2.$$

Da e^{-x} eine monoton fallende Funktion ist, stehen in der Summe lauter positive Glieder, und es folgt $\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \lambda^2} < 0$.

Der angegebene Beweis ist nicht auf die Zustandssumme beschränkt. Wie man leicht sieht, gilt allgemein

$$\sum f(\varepsilon_n) \geq \sum f(\eta_n) \quad (11)$$

vorausgesetzt, daß $f'(x)$ in dem Intervall, in dem die Eigenwerte liegen, eine monoton zunehmende Funktion ist. [Man braucht in (9) und (10) nur $\mathbf{W} = \sum \mathbf{P}_n f'(x)$ zu setzen.]

Eine Anwendung von (11) ergibt sich z. B. für den Schwingungsanteil der inneren Energie eines Moleküls oder Kristalls, der gegeben ist durch

$$U_{vib} = R \sum \left\{ \frac{\Theta_n}{e^{\Theta_n/T} - 1} + \frac{\Theta_n}{2} \right\} = R T \sum y_n \coth y_n,$$

wobei $y_n = \frac{h\nu_n}{2kT}$ ist, und über die verschiedenen Schwingungsfrequenzen zu summieren ist. Da die ν_n bzw. y_n die Eigenwerte einer Matrix sind, hat man den Satz (11) mit $f(x) = x \coth x$. Es ist $f(x)'' = 2(x \coth x - \coth x) / \sinh^2 x > 0$. $f(x)'$ ist also monoton ansteigend, es gilt der Satz (11), und Näherungswerte für die Frequenzen liefern eine untere Schranke für U . Dagegen erhält man keine Ungleichung für den Schwingungsanteil der spezifischen Wärme. Es ist

$$C_{vib} = R \sum \frac{y^2}{\sinh^2 y_n}.$$

Hier hat man also $f(x) = x^2 / \sinh^2 x$, und f' ist nicht monoton.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Technischen Hochschule München

Zur Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bändermodell des Festkörpers

Von

ALFRED SCHÖNHOFER

(Eingegangen am 7. September 1957)

Es wird gezeigt, daß sich die Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bändermodell des Festkörpers schon mit Hilfe eines eindimensionalen Kristallmodells mit δ -Potentialen verstehen läßt. Dabei ergibt sich, daß der überwiegende Teil des beobachteten Effekts durch die Temperaturabhängigkeit der Amplituden der Gitterschwingungen, mit denen die Elektronen in Wechselwirkung stehen, zustande kommt, die Wärmeausdehnung des Gitters dagegen nur einen kleinen Beitrag liefert. Die berechnete Größenordnung des Effekts stimmt mit den experimentellen Werten überein.

Einleitung

Mannigfache Messungen an zahlreichen Festkörpern ergaben — in der Sprache des Bändermodells — eine im wesentlichen lineare Temperaturabhängigkeit der Energielücke ΔE zwischen Valenz- und Leitungsband¹:

$$\Delta E = \Delta E^0 - \beta T \quad \text{mit} \quad \beta \approx 10^{-4} \text{ eV/}^\circ\text{K.} \quad (1)$$

Zur theoretischen Deutung dieser Erscheinung wurde sowohl die Wärmeausdehnung des Kristallgitters² als auch die Wechselwirkung der Elektronen mit den Gitterschwingungen³ herangezogen. Dabei zeigte sich, daß die Wärmeausdehnung höchstens einen Bruchteil des beobachteten Effekts zu erklären vermag, während der überwiegende Anteil — insbesondere nach der Arbeit von FAN³ — auf die Wechselwirkung mit den Gitterschwingungen zurückgeführt werden muß. In der zuletzt genannten Arbeit wird das Blochsche Störungsglied der Leitfähigkeitstheorie⁴ benutzt und damit die Änderung der Energiebänder mit der Temperatur

¹ Vgl. z.B. MORIN, F. J., u. J. P. MAITA: Phys. Rev. **94**, 1525 (1954). — OSWALD, F.: Z. Naturforsch. **10a**, 927 (1955). — MACFARLANE, G. G., u. V. ROBERTS: Phys. Rev. **97**, 1714 (1955); **98**, 1865 (1955). — Herrn Dr. F. OSWALD, Erlangen, habe ich für wertvolle Literaturhinweise zu danken.

² MÖGLICH, F., u. R. ROMPE: Z. Physik **119**, 472 (1942).

³ MÖGLICH, F., N. RIEHL u. R. ROMPE: Z. techn. Physik **21**, 128 (1940). — RADKOWSKY, A.: Phys. Rev. **73**, 749 (1948). — SEIWERT, R.: Ann. Physik **6**, 241 (1949). — BARDEEN, J., u. W. SHOCKLEY: Phys. Rev. **80**, 72 (1950). — FAN, H. Y.: Phys. Rev. **82**, 900 (1951).

⁴ Vgl. z.B. SEITZ, F.: The Modern Theory of Solids. New York 1940.

störungstheoretisch berechnet. Durch die Einführung einer Wechselwirkungsenergie zwischen Elektron und Gitterschwingungen wird natürlich der Rahmen der adiabatischen Näherung, die der Aufteilung des Gesamtsystems in Elektronenbewegung und Gitterschwingungen und damit dem Bändermodell zugrunde liegt, überschritten⁵.

In der vorliegenden Arbeit soll nun gezeigt werden, daß es möglich ist, die Temperaturabhängigkeit (1) der Bandlücke bereits aus einem einfachen, eindimensionalen Kristallmodell in streng adiabatischer Behandlung zu gewinnen. Dabei wird gleichzeitig die Wechselwirkung des Elektrons mit den Gitterschwingungen *und* die Wärmeausdehnung des Kristalls berücksichtigt, während in den bisherigen Arbeiten immer nur der eine *oder* der andere Effekt behandelt wurde. Im Sinne einer strengen adiabatischen Näherung wird die Wechselwirkung dadurch erfaßt, daß für die Elektronenbewegung nicht die Gleichgewichtslagen, sondern die momentanen Lagen der Gitterbausteine* verantwortlich sind. Als Kristallmodell wird eine lineare Kette von δ -Funktionen gleicher Stärke benutzt, durch welche die Wirkung der Gitterbausteine approximiert wird. Entsprechend den momentanen Lagen der Gitterbausteine sind die δ -Funktionen im allgemeinen nicht äquidistant angeordnet⁶.

1. Der Einfluß der thermischen Gitterschwingungen auf die Energielücke

Der Einfluß eines durch thermische Gitterschwingungen hervorgerufenen Auslenkungszustands der linearen Kette, der sich nach N Gitterbausteinen periodisch wiederholt, auf das Energiebänderschema wurde in I in streng adiabatischer Näherung untersucht. Die Anordnung der Gitterbausteine besaß also die primitive Periode

$$L = Na = \sum_{q=1}^N l_q(\varepsilon) \quad (2)$$

(a = Abstand in der Gleichgewichtslage; $l_q(\varepsilon)$ = momentaner Abstand; ε = Parameter, der die Auslenkung aus der Gleichgewichtslage kennzeichnet, z. B. Amplitude der Auslenkung). Es ergab sich für die Energieeigenwerte E , für die der Parameter \varkappa mit $\varkappa^2 = 2mE/\hbar^2$ eingeführt wurde, die Bedingung

$$|S(\varepsilon, \varkappa)| \leq 2, \quad (3)$$

* Damit sind hier, im Rahmen der Einelektronennäherung, die Atome des Kristalls gemeint.

⁵ Vgl. z. B. HAUG, A.: Z. Physik **146**, 75 (1956).

⁶ HAUG, A., u. A. SCHÖNHOFER: Z. Physik **148**, 513 (1957); im folgenden mit I zitiert.

wobei die Eigenwertfunktion S für den Fall

$$\left| \frac{mC}{\kappa \hbar^2} \right| \ll 1, \quad (4)$$

d.h. für kleine δ -Stärken $|C|$ bzw. für hohe Elektronenenergien κ näherungsweise folgende Gestalt hatte⁷:

$$S = 2 \cos \kappa L + 2N \frac{mC}{\kappa \hbar^2} \sin \kappa L + \left. \left\{ \left(\frac{mC}{\kappa \hbar^2} \right)^2 \left\{ \sum_{\mu=1}^N \sum_{\nu=1}^{N-1} \cos \left[\kappa \left(\sum_{\varrho=\mu}^{\mu+\nu-1} l_{\varrho} - \sum_{\varrho=\mu+\nu}^{\mu+N-1} l_{\varrho} \right) \right] - N(N-1) \cos \kappa L \right\} \right\} \right\} \quad (5)$$

Für $\varepsilon=0$ ging die Bedingung (3) über in die Eigenwertbedingung für eine Folge von äquidistanten δ -Potentialen (streng periodisches Potential), die bekanntlich zu einem Energiebänderschema B führt, bei dem „benachbarte Bandgrenzen“ gegeben sind durch

$$\left. \begin{aligned} u_1 &= n\pi - \Delta_n^\circ \\ u_2 &= n\pi \\ (u &= \kappa a; u^2 > 0); \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

dabei bedeutet u_2 die untere Grenze des $(n+1)$ -ten Bandes, u_1 die obere Grenze des n -ten Bandes und Δ_n° die Breite der dazwischenliegenden Lücke⁸. Unter der Voraussetzung (4) gilt⁹

$$\Delta_n^\circ = -\frac{2mC}{n\pi \hbar^2}. \quad (7)$$

Die Bandengrenzen^{*} des Bänderschemas für beliebiges ε sind nach (3) implizit gegeben durch

$$S(\varepsilon, u) = \pm 2. \quad (8)$$

Der Anfang der Taylor-Entwicklung ihrer expliziten Gleichung um $\varepsilon=0$ lautet daher

$$\left. \begin{aligned} u(\varepsilon) &= u_i - \varepsilon \cdot \left(\frac{S_\varepsilon}{S_u} \right)_{\substack{\varepsilon=0 \\ u=u_i}} - \\ &- \frac{\varepsilon^2}{2} \cdot \left(\frac{S_\varepsilon^2 S_{uu} - 2 S_\varepsilon S_u S_{\varepsilon u} + S_u^2 S_{\varepsilon \varepsilon}}{S_u^3} \right)_{\substack{\varepsilon=0 \\ u=u_i}} \end{aligned} \right\} \quad (i=1; 2). \quad (9)$$

* Die hier gemeinten Bandgrenzen wurden in I als „äußere Bandgrenzen“ bezeichnet.

⁷ SCHÖNHOFER, A.: Diplomarbeit, Technische Hochschule München, 1956. Wie dort nehmen wir $C < 0$ an.

⁸ Vgl. SAXON, D. S., u. R. A. HUTNER: Philips Res. Rep. **4**, 81 (1949).

⁹ Vgl. z. B. SOMMERFELD, A., u. H. BETHE: Elektronentheorie der Metalle. In Handbuch der Physik, 2. Aufl., Bd. XXIV/2, S. 333.

Im Rahmen der Näherung (5) gilt⁷ nun für die partiellen Ableitungen von S

$$\left. \begin{aligned} (S_\varepsilon)_{\varepsilon=0} &= 0, & (S_u)_{\substack{\varepsilon=0 \\ u=u_i}} &= \frac{2N^2 m C a}{n \pi \hbar^2} (-1)^{Nn+i} \\ \text{und } (S_{\varepsilon\varepsilon})_{\substack{\varepsilon=0 \\ u=u_i}} &= 4 \frac{m^2 C^2}{\hbar^4} (-1)^{Nn+1} \cdot F_0 \quad (n = \text{Bandnummer}), \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

wobei $F_0 = F(\varepsilon = 0)$ und

$$F = \sum_{\mu, \nu=1}^N |\mu - \nu| (|\mu - \nu| - N) \frac{dl_\mu}{d\varepsilon} \frac{dl_\nu}{d\varepsilon} \quad (11)$$

ist. Es läßt sich zeigen⁷, daß diese quadratische Form der $dl_\nu/d\varepsilon$ — bei Einhaltung der Nebenbedingung (2) — positiv definit ist. Mit (6), (7) und (10) ergibt sich aus (9) für die Lücke zwischen dem n -ten und dem $(n+1)$ -ten Band in der $\kappa a = u$ -Skala der Ausdruck

$$\Delta_n(\varepsilon) = [u(\varepsilon)]_{i=2} - [u(\varepsilon)]_{i=1} = -\frac{2m C a}{n \pi \hbar^2} + \varepsilon^2 \cdot \frac{2m C n \pi}{N^2 a \hbar^2} F_0. \quad (12)$$

Daraus folgt nach der Definition von u mit (4) für die Bandlücke in der Energieskala

$$\Delta E_n = \left(\frac{\hbar^2 u}{a^2 m} \right)_{u=n\pi} \cdot \Delta_n = -\frac{2C}{a} + \varepsilon^2 \cdot \frac{2C n^2 \pi^2}{N^2 a^3} F_0. \quad (13)$$

Damit ist — jedenfalls für kleine Werte von ε — die Energielücke als Funktion des Auslenkungsparameters dargestellt, und es muß nun der letztere mit den Gitterschwingungen und dadurch mit der Temperatur in Verbindung gebracht werden.

Die Auslenkung des ϱ -ten Gitterbausteins aus seiner Gleichgewichtslage ϱa werde mit U_ϱ bezeichnet. Dann sind die Normalschwingungen unserer linearen Kette, für die wir periodische Grenzbedingungen mit dem Grundgebiet $G a$ ($G \gg 1$, ganz) annehmen, gegeben durch⁹

$$U_\varrho = \varepsilon \cos(\sigma \varrho a - \omega t + \delta), \quad (14)$$

wobei die Wellenzahl σ eine Funktion von ω ist. N ist jetzt Teiler von G . Wir beschränken uns nun im Sinne der Einsteinschen Näherung⁴ auf die Betrachtung einer einzigen Normalschwingung^{*}; ihre Amplitude ε wählen wir als Auslenkungsparameter. Dann ist in komplexer Schreibweise

$$\left. \begin{aligned} l_\varrho &= a + U_{\varrho+1} - U_\varrho = a + b e^{i\sigma \varrho a} (e^{i\sigma a} - 1) + b^* e^{-i\sigma \varrho a} (e^{-i\sigma a} - 1) \\ b &= \frac{\varepsilon}{2} e^{-i\omega t}. \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

* Die Phasenkonstante in (14) kann dann als unwesentlich wegfallen.

Damit läßt sich F_0 explizit berechnen; unter der Annahme $N \gg 1$ * ergibt sich

$$F_0 = N^2 \quad (16)$$

unabhängig von t . Letzteres ist für die Anwendung der adiabatischen Näherung natürlich sehr günstig.

2. Die Temperaturabhängigkeit der Energielücke

Wir nehmen, wie bereits bemerkt, für das ganze System eine einheitliche Schwingungsfrequenz ω an und setzen ferner eine so hohe Temperatur T voraus, daß für die Oszillatoren die Boltzmann-Statistik gilt ($T \gg \Theta = \hbar \omega / k$, k = Boltzmannsche Konstante). Dann ist die Energie pro Gitterbaustein einerseits entsprechend den zwei Freiheitsgraden des Teilchens (Translation und Schwingung) gleich kT , andererseits gleich der maximalen potentiellen Energie $\frac{1}{2} M \omega^2 \varepsilon^2$ (M = Masse des Gitterbausteins), die der Oszillator im Zustande der größten Auslenkung erreicht, in dem die kinetische Energie verschwindet. Daraus folgt

$$\varepsilon = \frac{1}{\omega} \sqrt{\frac{2kT}{M}}. \quad (17)$$

Nach (13) und (16) ist

$$\Delta E_n = -\frac{2C}{a} + \varepsilon^2 \cdot \frac{2C n^2 \pi^2}{a^3}. \quad (18)$$

In diesem Ausdruck ist außer ε nur noch a (infolge der Wärmeausdehnung des Gitters) temperaturabhängig. MÖGLICH und ROMPE², die nur die Änderung von ΔE infolge der Temperaturabhängigkeit von a untersuchen, halten dabei das Produkt Ca konstant. Dann ist also auch C temperaturabhängig, und zwar wie $1/a$. Eine solche Verkleinerung der Potentialstärke, d.h. Vergrößerung der Durchlässigkeit der δ -Schwellen mit wachsendem a erscheint jedoch physikalisch nicht sinnvoll; vielmehr entspricht der Abhängigkeit der Potentialverhältnisse von der Gitterkonstanten im realen Kristall zweifellos eher eine konstante oder allenfalls eine mit a wachsende Potentialstärke $|C|$, worauf schon SEIWERT hinweist³. Wir sehen daher C als temperaturunabhängig an.

Wir entwickeln nun die Funktion $\Delta E_n(T)$ in eine Taylor-Reihe um einen Punkt T_0 und brechen nach dem linearen Glied ab, wobei wir auch das Restglied R abschätzen. Für a nehmen wir eine lineare Temperaturabhängigkeit an:

$$a = a_0 [1 + \alpha(T - T_0)]. \quad (19)$$

* Das bedeutet noch keine Vorschrift für die Größenordnung von σ , also keine wesentliche Einschränkung der Allgemeinheit. Für kleine Werte von N würde in (16) übrigens nur ein zeitabhängiges, im Zeitmittel wieder herausfallendes Glied hinzutreten.

Mit den Bezeichnungen

$$A_1 = -\frac{2C}{a_0}, \quad A_2 = -\frac{4Cn^2\pi^2\hbar}{a_0^3M\omega^2} \quad (A_{1,2} > 0; C < 0) \quad (20)$$

ergibt sich aus (18) mit (17) und (19)

$$\left. \begin{aligned} \Delta E_n(T) &= A_1 - A_2 T_0 - [A_1 \alpha + A_2 (1 - 3 \alpha T_0)] (T - T_0) + R \\ &= A_1 (1 + \alpha T_0) - 3 A_2 \alpha T_0^2 + (-A_1 \alpha + 3 A_2 \alpha T_0 - A_2) T + R. \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

Das Restglied lautet:

$$\left. \begin{aligned} R &\approx (A_1 \alpha^2 - 6 A_2 \alpha^2 T_1 + 3 A_2 \alpha) (T - T_0)^2 \\ &T_1 \text{ im Intervall } (T_0, T); \end{aligned} \right\} \quad (22)$$

dabei wurde statt a überall a_0 gesetzt, was die Größenordnung von R gewiß nicht beeinflußt. Es folgt, indem wir alle Glieder positiv nehmen und für T_1 den größten möglichen Wert einsetzen:

$$|R| \lesssim [A_1 \alpha^2 + 3 A_2 \alpha^2 (T + T_0 + |T - T_0|) + 3 A_2 \alpha] (T - T_0)^2. \quad (23)$$

Der Koeffizient von T in Gl. (21) besteht aus drei Gliedern. Das Auftreten von α und A_2 zeigt folgendes: Das erste Glied ($X = -A_1 \alpha$) gibt den direkten Einfluß der Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten wieder, das zweite ($Y = 3 A_2 \alpha T_0$) einen indirekten Einfluß dieser Abhängigkeit über die Gitterschwingungen, während das dritte Glied ($Z = -A_2$) die unmittelbare Wirkung der Gitterschwingungen zum Ausdruck bringt. Durch Einsetzen von Zahlenwerten in (21) und (23) lassen sich die Größenordnungen dieser Effekte abschätzen und die weitgehende Linearität der ganzen Erscheinung zeigen.

Zunächst setzen wir $n = 1$; es werden also, wie üblich, die untersten Bänder des Modells dem Valenz- und Leitungsband des realen Kristalls zugeordnet. Ferner nehmen wir für unsere Gitterschwingungen eine Frequenz $\nu = 5 \cdot 10^{12} \text{ sec}^{-1}$ an; das entspricht einer Debye-Temperatur $\Theta = 240^\circ \text{ K}$. Mit $a_0 = 3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$, $M = 5 \cdot 10^{-23} \text{ g}$ (\approx Masse des Siliziumatoms) und dem Ausdehnungskoeffizienten $\alpha = 10^{-5} \text{ grad}^{-1}$ wird das lineare Glied in (21) für $T_0 < 10^4 \text{ }^\circ \text{ K}$ von der Größenordnung $10^3 |C| \cdot T \text{ erg}$ (C in erg cm); dagegen ist R für $T, T_0 < 10^4 \text{ }^\circ \text{ K}$ von der Größenordnung $0,1 |C| \cdot (T - T_0)^2 \text{ erg}$. Daher läßt sich etwa für $|T - T_0| < 250^\circ \text{ K}$, d.h. in einem sehr weiten Temperaturintervall, in (21) ohne weiteres R gegenüber dem linearen Glied vernachlässigen.

Nun wählen wir den Entwicklungspunkt T_0 im Bereich der Zimmertemperatur: $T_0 = 300^\circ \text{ K}$. Dann wird mit den obigen Daten das Verhältnis $(X + Y) : (X + Y + Z) = 1 : 7,5$, d.h. der Beitrag der Wärmeausdehnung

des Gitters verhält sich zum Gesamteffekt (zum gesamten Temperaturkoeffizienten β) etwa wie 1:7,5*.

Das ist in guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund¹⁰ (Verhältnis 1:6). Der größte Teil des Gesamteffekts wird also durch die Wechselwirkung des Elektrons mit den Gitterschwingungen hervorgerufen.

Schließlich setzen wir noch $C = -5 \cdot 10^{-20}$ erg cm. Dies ist sicher eine plausible Größenordnung für die Potentialstärke. Man erhält damit einen brauchbaren Wert für die Energielücke (2 eV); ferner ist (4) im Bereich der Bandlücke einigermaßen erfüllt ($|mC/\kappa\hbar^2| < 0,6$). Damit ergibt sich zuletzt aus (21)

$$\Delta E = 2,1 - 1,5 \cdot 10^{-4} \cdot T \text{ eV.} \quad (24)$$

Das eindimensionale Modell liefert also sowohl den richtigen Temperaturkoeffizienten [vgl. (1)] als auch die richtigen Anteile von Wärmeausdehnung und Wechselwirkung zwischen Elektron und Gitterschwingungen am Gesamteffekt.

Herrn Dozent Dr. A. HAUG bin ich für die Anregung zu dieser Arbeit und sein reges Interesse an ihrem Fortgang sehr zu Dank verpflichtet.

* Wegen $|X| \gg Y$ ergibt $X:(X+Y+Z)$ ungefähr das gleiche Verhältnis.

¹⁰ SEIWERT, R.: Siehe Fußnote 3 auf S. 67.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Bonn

Die Erzeugung von intensiven Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase. Wirkungsquerschnitte für den Stoß H_2-H_2 und H_2-N_2

Von

A. MINTEN und O. OSBERGHAUS

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Oktober 1957)

Ein aus einer großen Zahl von langen Kanälen bestehender Molekularstrahl-ofen, wie er zuerst von ZACHARIAS für Alkalimetalle verwendet worden ist, wird zur Erzeugung eines intensiven Molekularstrahls von H_2 und N_2 benutzt. Bei Verwendung einer Vakuumpumpe von nur 100 Liter/sec Sauggeschwindigkeit lassen sich Teilchenstromdichten bis zu 10^{15} Molekülen/cm² sec in 40 cm Abstand von der Quelle erreichen. Mit dieser Anordnung und einem Stern-Pirani-Manometer als Detektor wurden die totalen Streuquerschnitte für den Stoß H_2 gegen H_2 und H_2 gegen N_2 bestimmt.

Einleitung

Zur Erzeugung von Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase sind normalerweise Vakuumpumpen sehr großer Saugleistung erforderlich, weil nur ein kleiner Bruchteil der aus dem „Ofen“ mit einer cos-Verteilung austretenden Moleküle für den eigentlichen Strahl ausgenutzt wird. ZACHARIAS u. Mitarb. [1] haben einen Molekularstrahl-ofen für Alkalimetalle entwickelt, der mit sehr kleinen Substanzmengen arbeiten kann, weil das Verhältnis der Zahl der Atome im Strahl zu der insgesamt verdampften Menge besonders günstig ist. Benutzt man diese Ofenkonstruktion zur Erzeugung von Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase, wie das inzwischen auch durch GORDON u. Mitarb. [2] für ihre Ammoniakuhr geschehen ist, so kommt man aus dem gleichen Grunde mit Pumpen relativ kleiner Saugleistung aus. Der Ofen hat an Stelle einer einzigen Öffnung eine große Zahl von parallelen Kanälen, die dem Atomstrahl eine gute Bündelung in Vorwärtsrichtung geben. Wegen des praktischen Interesses eines solchen Molekularstrahl-ofens sollen seine Eigenschaften hier etwas näher beschrieben werden. Wir haben die Apparatur weiter dazu benutzt, um die totalen Streuquerschnitte für die Streuung von Wasserstoff an Wasserstoff und Stickstoff zu untersuchen.

Wirkungsweise und Aufbau

Wir betrachten zunächst die Winkelverteilung der aus einem langen Kanal (Länge L) von rechteckigem Querschnitt (Kantenlänge a, b ; $a > b$; $L \gg a$) austretenden Moleküle unter der Voraussetzung, daß keine Gaszusammenstöße im Kanal stattfinden und daß die Moleküle nach einem Wandstoß mit einer \cos -Verteilung desorbiert werden. Eine solche Verteilung scheint bisher nur für den speziellen Fall eines kreisförmigen Kanals, dessen Länge gleich seinem Durchmesser ist, berechnet worden zu sein [3]. Für einen rechteckigen Kanal ist der Zusammenhang zwischen dem Teilchenstrom $S d\Omega$ in das Raumwinkelement $d\Omega$ und den Winkeln p und q , die der Geschwindigkeitsvektor \mathbf{v} des Moleküls mit den zwei Wandflächen des Kanals bildet, gegeben durch

$$S d\Omega = \frac{N}{\pi} f(p, q) d\Omega$$

mit

$$f(p, q) = 1 - \frac{1}{2} (p + q) + \frac{1}{3} p \cdot q$$

für $p \leq 1$ und $q \leq 1$

und

$$f(p, q) = \frac{1}{2q} - \frac{1}{6} \frac{p}{q^2}$$

für $q \geq p$ und $q \geq 1$.

N ist die Zahl der Moleküle, die im Ofenraum pro sec auf eine Fläche von der Größe des Kanalquerschnitts $a \cdot b$ treffen. Der Winkel p zwischen \mathbf{v} und der Wandfläche $a \cdot L$ des Kanals ist gemessen in Einheiten b/L , der Winkel q zwischen \mathbf{v} und der Wandfläche $b \cdot L$ in Einheiten a/L . Zum Beispiel bedeutet $p = q = 1$, daß der Geschwindigkeitsvektor die Richtung der Raumdiagonalen des Kanals hat. Die angegebenen Formeln gelten

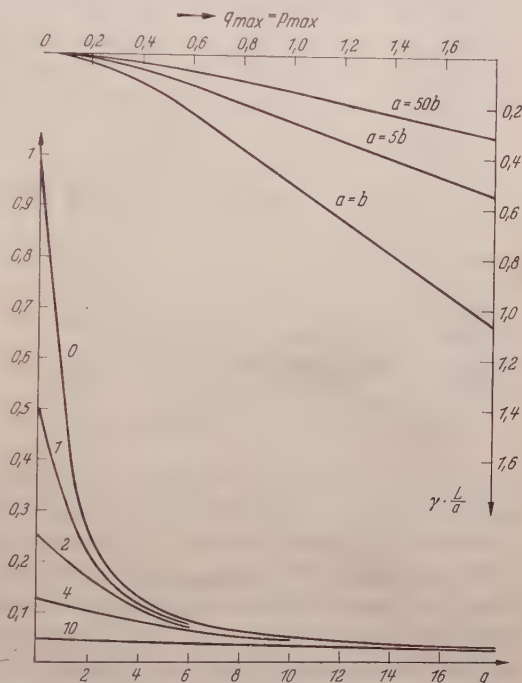


Fig. 1. Untere Hälfte: Verteilungsfunktion $f(p, q)$ als Funktion des reduzierten Winkels q für verschiedene Werte des Winkels p . Obere Hälfte: Bruchteil q_{\max} der insgesamt den Kanal durchsetzenden Moleküle, die in einen rechteckigen, zur Kanalachse symmetrischen Raumwinkelbereich zwischen $-q_{\max}$ und $+q_{\max}$ bzw. $-p_{\max}$ und $+p_{\max}$ treten, als Funktion des Maximalwinkels für verschiedene Kanalformen a/b . p_{\max} ist dabei gleich q_{\max} gesetzt, d.h., die Verteilung wird über einen rechteckigen Strahlausschnitt integriert, der dem Kanalquerschnitt ähnlich ist. Die Ordinatenwerte sind noch mit dem Faktor a/L zu multiplizieren. Die Kurven setzen sich für größere Winkel geradlinig fort

nur für den praktisch allein interessierenden Fall, daß die tatsächlichen Winkel ($p \cdot b/L$ bzw. $q \cdot a/L$) klein gegen 1 sind. Die Verteilung zeigt Fig. 1. Aus der oberen Hälfte der Figur entnimmt man für einen quadratischen Kanal von $0,1 \cdot 0,1 \text{ mm}^2$ Querschnitt und 25 mm Länge, daß 0,2% aller Moleküle in einen Raumwinkelbereich von $7 \cdot 10^{-5}$ sterad ($p_{\max} = q_{\max} = 1$) fliegen, verglichen mit 0,002% bei einem entsprechenden Spalt.

Die Bündelung des Molekularstrahls setzt einen hinreichend niedrigen Gasdruck im Ofen voraus: Es dürfen keine Gaszusammenstöße im Kanal erfolgen. Um trotz niedrigen Gasdrucks eine hohe Strahlintensität zu erreichen, ist eine große Zahl von parallelen Kanälen erforderlich. ZACHARIAS [7] hat einen einfachen Weg angegeben, ein solches System von

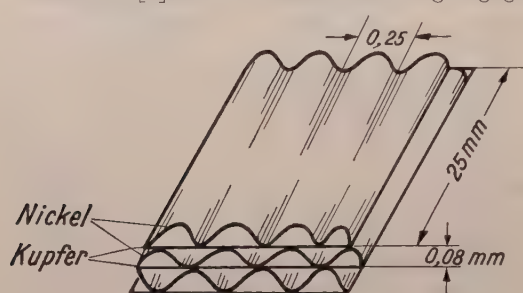


Fig. 2. Aufbau des Molekularstrahlofens

Kanälen herzustellen. Nach Fig. 2 werden abwechselnd glatte und gewellte Metallfolien aufeinandergesetzt, zu einem Paket von $2 \cdot 10 \text{ mm}^2$ Querschnitt zusammengepreßt und in eine rechteckige Öffnung des Ofenflansches eingeführt.

Die gewellten Folien, die uns freundlicherweise vom M.I.T., Cambridge, USA, zur Verfügung gestellt wurden, werden hergestellt, indem man einen Blechstreifen, in unserem Falle Nickelblech von 0,01 mm Stärke, durch zwei ineinandergreifende Rändel laufen läßt. Die Streifen waren in Riefenrichtung 25 mm breit, die Rändelperiode betrug 0,25 mm und die Höhe der dreieckigen Kanäle etwa 0,08 mm. Der Ofen hatte 1300 Kanäle, deren Gesamtquerschnitt mehr als 50% der Ofenfläche von 20 mm^2 ausmachte.

Als Detektor wird ein Stern-Pirani-Manometer mit einer Meß- und einer Kompensationskammer in einem massiven Messingblock verwendet. Als Heizdrähte dienen Platinbänder von $0,5 \mu$ Dicke und 1 mm Breite mit einem Heizstrom von 60 mA. Der Molekularstrahl tritt durch einen Kanal von $10 \cdot 0,08 \text{ mm}^2$ Querschnitt und 15 mm Länge in die Meßkammer. Die Dichte im Meßraum wird durch diesen Kanal auf das 300fache der Strahldichte erhöht. Die Zeitkonstante des Manometers ist etwa 1 sec. Bei sorgfältigem Brückenabgleich liegt die durch die kurzzeitigen Galvanometerschwankungen verursachte Unsicherheit in der Messung der Teilchenstromdichte bei $4 \cdot 10^{12}$ Molekülen/cm² sec.

Messung des Molekularstrahls

Mit dem oben beschriebenen Ofen wurden Molekularstrahlen von Stickstoff und Wasserstoff mit Teilchenstromdichten bis zu 10^{15} Mole-

külen/cm²sec in 40 cm Abstand von der Quelle hergestellt. Bei einer Pumpgeschwindigkeit von 100 Liter/sec blieb dabei der Gasdruck unter 10^{-5} Torr. Ähnliche Strahldichten hätten bei Molekularstrahlöfen üblicher Bauart Pumpleistungen in der Größenordnung von 10000 Liter/sec erfordert. Der Zusammenhang zwischen Strahlintensität in Vorwärtsrichtung und dem Ofendruck ist bis zu 10^{-1} Torr hinauf linear (nach einer Korrektur für die Streuung im Gasraum bei den höchsten Drucken), obwohl bei einem Gasdruck von 10^{-1} Torr im Ofen der Strahl infolge der Gaszusammenstöße im

Kanal schon merklich verbreitert ist. Fig. 3 zeigt einige der gemessenen Winkelverteilungen und ihre Verbreiterung mit zunehmendem Ofendruck. Gestrichelt ist eingezeichnet die nach den oben angegebenen Formeln berechnete Verteilung unter Berücksichtigung der endlichen Ausdehnung von Detektor und Ofen. Für die Berechnung wurde angenommen, daß die dreieck-

förmigen Kanäle von 0,25 mm Breite und 0,08 mm Höhe durch rechteckförmige von $0,15 \cdot 0,05$ mm² ersetzt werden können. Obwohl die so berechnete Winkelverteilung sicherlich nur eine grobe Annäherung darstellt, ist die Abweichung von den gemessenen Werten größer als man erwarten sollte. Wahrscheinlich ist auch bei dem niedrigsten Ofendruck von $2,5 \cdot 10^{-3}$ Torr die Verteilung noch merklich durch Gaszusammenstöße im Kanal verbreitert. Man muß dabei berücksichtigen, daß die totalen Wirkungsquerschnitte für Streuung erheblich größer sind als die gaskinetisch ermittelten Stoßquerschnitte (s. unten). Natürlich kann eine Verbreiterung der Verteilung auch dadurch erfolgen, daß die Moleküle nicht, wie angenommen, unter allen Umständen von den Wänden des Kanals mit einer cos-Verteilung desorbiert, sondern zum Teil auch elastisch reflektiert werden.

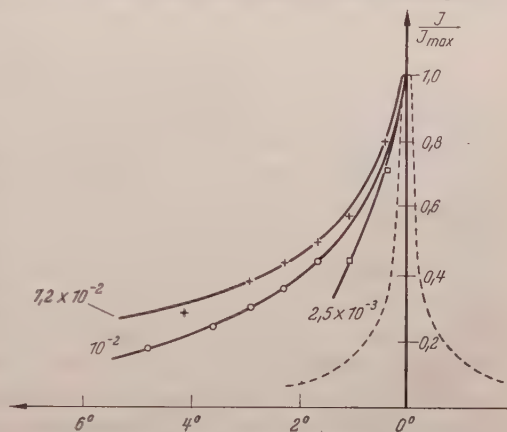


Fig. 3. Winkelverteilung des Molekularstrahls für Ofendrucke von $7,2 \cdot 10^{-3}$, 10^{-3} und $2,5 \cdot 10^{-3}$ Torr. Die berechnete Verteilung ist gestrichelt eingezeichnet

Streumessungen

Wir haben versucht, aus der Intensitätsabnahme des Molekularstrahls bei vorgegebenem Gasdruck zwischen Ofen und Detektor die totalen Wirkungsquerschnitte für die Streuung von Wasserstoff und

Stickstoff zu bestimmen. Für die Streuung von H_2 an H_2 gibt es eine ältere Messung [4], derzufolge der Stoßquerschnitt des H_2 -Moleküls den gaskinetisch ermittelten Wirkungsquerschnitt um etwas mehr als das Doppelte übertrifft.

Bekanntlich wird bei jeder Streumessung nur dann wirklich der totale Streuquerschnitt gefunden, wenn das Winkelauflösungsvermögen der Apparatur einen bestimmten Grenzwinkel ϑ_0 wesentlich unterschreitet. Dieser Grenzwinkel ist nach MASSEY und MOHR [5] gegeben durch

$$\vartheta_0 \approx \frac{M_2}{M_1 + M_2} \cdot \frac{\lambda}{2r_{12}} = \frac{M_2}{M_1 + M_2} \frac{\lambda}{2} \sqrt{\frac{\pi}{Q}}.$$

M_2 ist die Masse des Moleküls im Streuraum, M_1 die Masse des Moleküls im Strahl, r_{12} der „Stoßradius“, Q der Streuquerschnitt und λ die de Broglie-Wellenlänge (im Schwerpunktsystem) der mittleren Relativgeschwindigkeit zwischen den Stoßpartnern. Der Faktor $M_2/(M_1 + M_2)$ rührt her von der Umrechnung vom Schwerpunktsystem ins Laborsystem. Mit den unten angegebenen Werten für Q erhält man für die Streuung eines Wasserstoffstrahls durch Wasserstoff bzw. Stickstoff $\vartheta_0 \approx 0,06$ bzw. $0,07$. Für die Streuung von Stickstoff an Stickstoff dagegen liegt der Wert von ϑ_0 bei $0,015$. Das Auflösungsvermögen der Apparatur ist nicht etwa durch den Winkel gegeben, unter dem der Detektorspalt vom Orte des Streuprozesses gesehen erscheint, sondern durch den Öffnungswinkel α des dem Pirani-Manometer vorgebauten Kanals von 15 mm Länge und 0,08 mm Breite, entsprechend einem α von 0,005. Die Bedingung $\alpha \ll \vartheta_0$ ist also für die Streuung von Wasserstoff an Stickstoff und Wasserstoff einigermaßen gut erfüllt. Es wurden die Werte gemessen:

Tabelle 1

Stoßvorgang	Q (cm ²)	Q/Q_k	C (erg · cm ⁶)
H_2-H_2	$1,17 \cdot 10^{-14}$	5	$5,9 \cdot 10^{-60}$
H_2-N_2	$1,30 \cdot 10^{-14}$	4	$5,9 \cdot 10^{-60}$

Die Streuquerschnitte Q sind wie üblich wesentlich größer als die gaskinetisch ermittelten Werte Q_k . In der letzten Spalte sind die nach MASSEY und MOHR [5] aus den Q -Werten berechneten Konstanten C der Van der Waals-Wechselwirkung $V = C/r^6$ angegeben. Der aus der Polarisierbarkeit berechnete [6] Wert für H_2-H_2 ist 11,4.

Es ist beabsichtigt, die Messung der Wirkungsquerschnitte mit verbessertem Winkelauflösungsvermögen der Apparatur zu kontrollieren.

Wir danken Herrn Professor Dr. W. PAUL für die Unterstützung und Förderung dieser Arbeit.

Literatur

- [1] ZACHARIAS, J. R. et al.: Quart. Prog. Rep., Res. Lab. of Electronics, M.I.T., Okt. 1954. — [2] GORDON, J. P., H. J. ZEIGER and C. H. TOWNES: Phys. Rev. **99**, 1264 (1955). — [3] CLAUSING, P.: Z. Physik **66**, 471 (1931). — [4] KNAUER, F., u. O. STERN: Z. Physik **53**, 766 (1929). — [5] MASSEY, H. S. W., and C. B. O. MOHR: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **141**, 434 (1933). — [6] HIRSCHFELDER, J. O., C. F. CURTISS and R. B. BILD: Molecular Theory of Gases and Liquids. New York: John Wiley & Sons 1954.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Erlangen

Die Polarisation der Co^{60} -Elektronen

Von

H. BIENLEIN, R. FLEISCHMANN und H. WEGENER

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 24. Oktober 1957)

Wegen der Existenz paritäts-nicht-erhaltender Wechselwirkungen sind die β -Zerfallselektronen longitudinal polarisiert. Für den erlaubten GT -Übergang Co^{60} wurde der Polarisationsgrad $P = G v_e/c$ für die Elektronengeschwindigkeit $v_e/c = 0,66$ gemessen. Die Messung erfolgte durch Mott-Streuung an Au-, Ag- und Al-Folien nach Ablenkung im Feld eines Kugelkondensators. Verschiedene Störquellen werden diskutiert und nach Möglichkeit durch geeignete Konstruktionen beseitigt. Man findet $G = -0,96 \pm 0,06$.

§ 1. Einleitung

Wegen der Existenz paritäts-nicht-erhaltender Wechselwirkung sind die β -Zerfallselektronen längs ihrer Bewegungsrichtung polarisiert. Nach JACKSON et al. [8] beträgt der Polarisationsgrad P eines erlaubten GT -Überganges:

$$\left. \begin{aligned} P &= \frac{G \cdot v_e/c}{1 + b \cdot m_0 c^2 / (E_e + m_0 c^2)} \\ G &= \frac{2 \cdot \operatorname{Re}(C_T C_T'^* - C_A C_A'^*) + \frac{\alpha Z \cdot m_0 \cdot c^2}{p_e} \cdot 2 \operatorname{Im}(C_T C_A'^* + C_T' C_A^*)}{|C_T|^2 + |C_T'|^2 + |C_A|^2 + |C_A'|^2} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

E_e = kinetische Elektronenenergie, v_e = Elektronengeschwindigkeit,
 p_e = Elektronenimpuls, Z = Ordnungszahl des β -Tochterkerns.

Der Fierz-Interferenzterm b verschwindet nach Ausweis des Experimentes [11]. Die Kopplungskonstanten C_T, C_A (paritätserhaltend) und C_T', C_A' (paritätsverletzend) sind reell oder komplex, je nachdem der β -Zerfall invariant gegenüber T (= time reversal) ist oder nicht. Der mit αZ behaftete Term in G ist wegen $\alpha = 1/137$ klein; er verschwindet exakt, wenn T erhalten wird.

Für den erlaubten GT -Strahler Co^{60} wurden v_e und P gemessen und dadurch G bestimmt. Die v_e -Messung erfolgte durch Ablenkung der Elektronen um 110° im elektrischen Feld. Dabei wird nach TOLHOEK [13] gleichzeitig die Longitudinalpolarisation in eine transversale verwandelt, die sich mit Hilfe der Mott-Streuung nachweisen läßt.

Unabhängig von uns haben kürzlich mehrere andere Gruppen [3], [4], [14] nach diesem oder anderen Verfahren [5], [6] die Größe G gemessen. Für erlaubte GT -Übergänge findet man übereinstimmend $G \approx -1$ mit Meßfehlern von meist mehr als 20%*. Die großen Meßfehler sind auf verschiedene Störungen zurückzuführen. Wir haben uns daher bemüht, diese Störungen zu analysieren und möglichst klein zu halten. Für $v_e/c = 0,66$ erhielten wir schließlich $G = -0,96 \pm 0,06$. Zum Vergleich dieses experimentellen Wertes mit theoretischen Werten siehe z.B. [2].

§ 2. Apparatur

Der Aufbau der Meßanordnung geht aus Fig. 1 hervor. Die Elektronenquelle Q wird durch eine eisenfreie Linse L in den Eingang des elektrischen Ablenkfeldes abgebildet. Dadurch wird erreicht: a) bessere

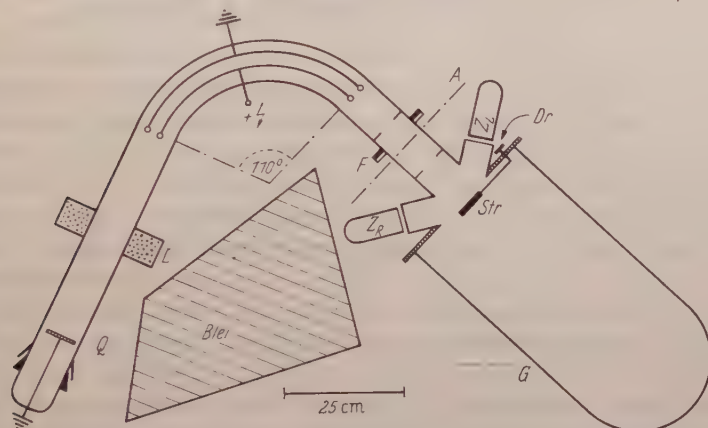


Fig. 1. Apparatur: $Q = \text{Co}^{60}$ -Präparat; L eisenfreie magnetische Linse; Str . Streufole; Z_L, Z_R Zählrohre; F Flansch; Dr Drehknopf; G große Glasglocke. Der Nachweisteil ist bei A gedreht zu denken, so daß Z_R über und Z_L unter der Zeichenebene liegt. Er kann bei A entfernt und durch ein β -Fenster ersetzt werden. Der Teil links von F und G war aus Glas, das Zwischenstück aus Metall. Durch Drehen von Dr lassen sich die verschiedenen Folien in das Elektronenbündel bringen. Die Umgebung der Zählrohre ist zur Verdeutlichung der Impulsdiskriminierung vergrößert gezeichnet

Möglichkeit der Abschirmung der Co^{60} - γ -Strahlung durch Blei, b) Vortsortierung der Elektronenimpulse, c) Verminderung der Elektronen, die durch Wandstreuung zur Mott-Streuung gelangen. Die Elektronen durchlaufen sodann das Ablenkfeld. Die Feldplatten sind Kugelflächenausschnitte. Die Transmission dieses „Kugelkondensators“ ist um etwa 25% größer als die eines gleich dimensionierten, von anderen Gruppen verwendeten „Zylinderkondensators“. Die Hochspannung an der inneren

* Man ist heute der Meinung, daß nicht nur bei den erlaubten GT -Übergängen, sondern auch bei allen übrigen β^\pm -Strahlern $P = \pm v_e/c$ gilt, obwohl für Au^{198} und Ga^{66} zunächst kleinere P -Werte gefunden wurden, die sich aber nachträglich als fehlerhaft erwiesen.

Feldplatte betrug bis zu $+ 50$ kV. Negative Hochspannung an der Außenplatte erwies sich als unbrauchbar, da unvermeidliche Feldemissions-elektronen zu einem beträchtlichen Zähluntergrund führten. Das Vakuum in der Glasapparatur betrug einige 10^{-5} Torr. Durch Feldemission traten stabilitätsstörende Wandaufladungen auf, die sich jedoch durch Spiegelladungen in einem geerdeten Silberpapierbelag der Außenwände vollständig kompensieren ließen.

Nach Durchlaufen des \mathcal{E} -Feldes sind die Elektronen monoenergetisch und nahezu transversal polarisiert. In der Streufolie *Str* erfolgt die Mott-Streuung in das linke und rechte Zählrohr Z_L bzw. Z_R . Bei einer ideal-symmetrischen Anordnung ist das Verhältnis der beiden Zählraten L und R durch

$$\frac{L}{R} = \frac{1 + S(\vartheta, v_e, Z) \cdot P}{1 - S(\vartheta, v_e, Z) \cdot P} \quad (2)$$

ϑ = Streuwinkel, Z = Ordnungszahl des Streuers

mit dem Polarisationsgrad P verknüpft. Die Asymmetriefunktion S wurde von SHERMAN [12] für verschiedene Z tabelliert. S erreicht bei $\vartheta \approx 120^\circ$ ein Maximum und hängt hier kaum von ϑ ab. Wir haben daher einen mittleren Streuwinkel von 120° gewählt. Eine genaue Kenntnis der Elektronenstrahl-Streufolien-Zählrohr-Geometrie ist dann nicht erforderlich (im Gegensatz zu Vorwärtstreuanordnungen [3]). S nimmt stark mit Z zu. Um die unvermeidliche, apparativ bedingte Streuasymmetrie der Anordnung zu bestimmen, wurden daher Vergleichsmessungen mit Streufolien aus Al ($S \approx -3\%$) durchgeführt. Zur Ermittlung des polarisationsabhängigen Effektes dienten Ag ($S \approx -20\%$)- und Au ($S \approx -42\%$)-Folien. Die Folien, außer der dicksten Al-Folie, wurden durch Aufdampfen der Metalle auf eine dünne Plexiglasfolie (z.B. $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) hergestellt. Die Streuwahrscheinlichkeit der Plexiglasunterlage war äußerst klein und wurde bei der Auswertung berücksichtigt. Die verschiedenen Folien waren auf Rahmen gespannt, die mittels einer Schliffdurchführung nacheinander in den Strahlengang gebracht werden konnten.

Die ungestreuten Elektronen laufen in die anschließende große Glasglocke, so daß die Gefäßwandstreuung nur mit sehr kleinem Raumwinkel wirksam ist.

Der Streuteil kann bei A entfernt und durch ein β -Fenster ersetzt werden. Die Anordnung eignet sich dann als elektrostatisches β -Spektrometer.

§ 3. Störquellen

Als Elektronenquelle diente Co^{60} (10 mC , $1 \text{ mg}/\text{cm}^2$) auf einer $13 \text{ mg}/\text{cm}^2$ -Kupferunterlage (elektrolytisch aufgebracht). Nach Ausweis von Hilfsmessungen findet in der Unterlage bereits vollständige Rückdiffusion

statt. Die Elektronen, die das Präparat in Feldrichtung verlassen, kann man in drei Gruppen einteilen: a) Vorwärts ausgesandte Sollelektronen, b) rückwärts ausgesandte und dann nach vorne diffundierende Rückdiffusionselektronen, c) seitwärts ausgesandte und dann nach vorne gestreute Elektronen (Fig. 2). In unserem Fall bildet a) den Hauptanteil. Gruppe b) erleidet durch häufige Wechselwirkung mit den Elektronenhüllen einen erheblichen Energieverlust (vgl. BOTHE [1]), der ebenso wie die teilweise relativistische Mitdrehung des Spins zur Depolarisation führt. Daher werden diese Elektronen als unpolarisiert angenommen. Sie lassen sich aus Form des Spektrums und Energieverlust bei der Rückdiffusion [1] berechnen. Gruppe c) spielt nur bei dicken Co^{60} -Folien eine Rolle. Ob unser Präparat dünn genug war, sollen weitere Experimente entscheiden. Eine allerdings ziemlich unsichere Abschätzung macht es unwahrscheinlich, daß die Elektronengruppe c) den Polarisationsgrad um mehr als 2 % erniedrigt. Bei der Auswertung wird dieser Effekt nicht berücksichtigt.

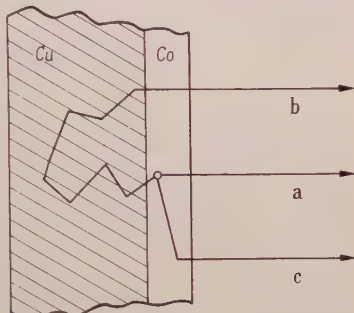


Fig. 2. Die Präparatelektronen lassen sich in drei Gruppen einteilen: a Vorwärtsausgesandte Sollelektronen, b Rückdiffusionselektronen, c seitwärts ausgesandte, nach vorn gestreute Elektronen

Durch das \mathcal{E} -Feld werden Elektronen aus dem Energiebereich $\Delta E/E \approx 1/30$ ausgesondert. Die kinetische Elektronenenergie E_e läßt sich aus der Feldgeometrie und der Ablenkspannung U berechnen. Zur Kontrolle wurden bei verschiedenen $E(U)$ -Werten Reichweitemessungen der bei A (Fig. 1) austretenden Elektronen gemacht. Die Resultate stimmen mit Literaturwerten [9] überein. Bei abgeschaltetem Feld sinkt die Zählrate bei A praktisch auf Null. Im Strahl sind dann also keine an der Wand gestreuten Elektronen vorhanden. Der v_e -Wert der zur Mott-Streuung kommenden Elektronen ist nach allem genauer als 1%.

Mit der als β -Spektrometer verwendeten Anordnung wurde das Kurie-plot des Co^{60} -Präparates aufgenommen (Fig. 3). Die Linearität für Elektronenenergien > 150 keV beweist die Brauchbarkeit als β -Spektrometer und zeigt an, daß man genauere Polarisationsmessungen erst bei Energien > 150 keV durchführen kann.

Bei den Polarisationsmessungen werden die monoenergetischen Elektronen durch die Streufolie (Schichtdicke d) in die Zähler gestreut. Die Zählrate Z eines Zählers als Funktion von d läßt sich schreiben: $Z = Z_0 + Z_1 d + Z_2 d^2 + \dots$. Die hier interessierenden einfach gestreuten Elektronen sind im Z_1 -Term enthalten. Den Term Z_0 (Nulleffekt, Folienrahmenstreuung) erfährt man durch eine $d=0$ -Messung. Die

Summanden $Z_2 d^2 + \dots$ enthalten die mehrfach gestreuten Elektronen, die für dicke Folien eine wesentliche Störung bedingen (s. [4]). Der Einfluß dieser Mehrfachstreuung auf die Links-Rechts-Asymmetrie wurde von HEINTZE [7] untersucht. Wir fanden, daß dieses Glied bei unseren Folienstärken außer acht gelassen werden durfte.

Das Glied $Z_1 d$ enthält außer den gewünschten unter $\vartheta = 120^\circ$ gestreuten Mott-Elektronen aber auch solche, die durch die Folie vorwärts

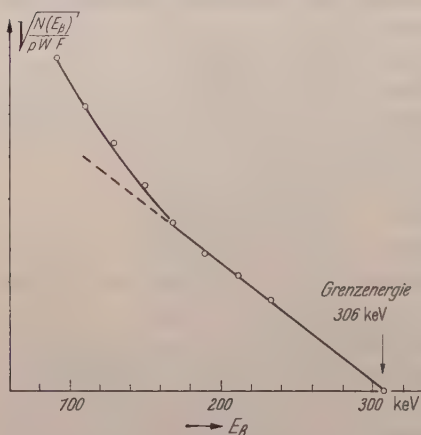


Fig. 3. Kurie-plot unseres Co^{60} -Präparates, aufgenommen mit der als elektrostatisches β -Spektrometer verwendeten Anordnung aus Fig. 1

gestreut wurden, die Gefäßwand trafen und von dort in das Zählrohr zurückdiffundierten. Um diese Störeelektronen möglichst zu unterdrücken, muß man geeignete Zählrohrblenden aufstellen, die Wandabstände groß wählen, Wandmaterial kleiner Ordnungszahl verwenden und — da die Elektronen bei der Rückdiffusion Energie verlieren — die Elektronenenergie diskriminieren. Wir haben den Nachweisteil nach diesen Grundsätzen konstruiert und konnten so die Zahl der ungewünschten Rückstreuелеktronen auf etwa 4% (berechnet) herunterdrücken. Ein

zuerst verwendeter, kleinerer Topf führte zu mehr als 50% Rückstreuелеktronen (berechnet und aus Reichweitmessungen geschlossen)!

§ 4. Messungen

Die Messungen wurden mit 166 keV-Elektronen ($v_e/c = 0,66$) ausgeführt. Um die apparative Asymmetrie zu eliminieren, mißt man die L/R -Asymmetrie mit Streufolien 1 und 2 verschiedener Ordnungszahl. Das Verhältnis $(L/R)_1 / (L/R)_2$ enthält diese Asymmetrie nicht mehr und lautet wegen (2):

$$\frac{(L/R)_1}{(L/R)_2} = \frac{1 + S(1) \cdot P}{1 - S(1) \cdot P} \cdot \frac{1 - S(2) \cdot P}{1 + S(2) \cdot P} \quad (3)$$

Die Ergebnisse der bisher an verschiedenen Folien durchgeführten Messungen sind in der Tabelle 1 zusammengefaßt.

Die Auswertung erfolgte gemäß (3). Dabei wurden folgende Korrekturen berücksichtigt: 1. Die endliche Ausdehnung von Streufolie und Zähler, 2. die Streuung der Plexiglasunterlage, 3. die an den Gefäßwänden rückgestreuten Elektronen, 4. die nicht ganz vollständige Umlenkung des Elektronenspins im elektrischen Feld.

Eine Abhängigkeit von der Folienstärke und der absichtlich etwas schräggestellten Al-Folie (empfindliches Einfachstreu-kriterium!) läßt sich im Rahmen des allerdings noch beträchtlichen mittleren Fehlers der Einzelmessung nicht nachweisen*. Der gewogene Mittelwert aus allen neun Messungen beträgt $P = -0,527 \pm 0,036$ ($\pm 0,044$). Über die Bedeutung des eingeklammerten Fehlers s. Fußnote*.

Der Elektronenstrahl enthält noch die Gruppe b) aus Fig. 2. Die Intensität dieser unpolarisierten Elektronen läßt sich nach § 3 berechnen und verhält sich zu der der Gruppe a) wie 0,195:1**. Der Polarisationsgrad der gewünschten Gruppe a) beträgt somit $P = -0,635 \pm 0,04$ ($\pm 0,05$). Daraus ergibt sich der Wert $G = -0,96 \pm 0,06$ ($\pm 0,07$) aus § 1.

Tabelle 1

Z_1/Z_2	$-P$	$-P$	$-P$
Au/Al	$0,56 \pm 0,07$	$0,47 \pm 0,07$	$0,57 \pm 0,10$
Ag/Al	$0,60 \pm 0,17$	$0,65 \pm 0,19$	$0,73 \pm 0,22$
Au/Ag	$0,53 \pm 0,12$	$0,34 \pm 0,16$	$0,44 \pm 0,15$
Bemerkungen	<div style="display: flex; align-items: center;"> <div style="margin-right: 10px;"> Au: 0,123 } mg Ag: 0,227 } cm^2 Al: 0,84 } </div> <div style="margin-right: 10px;"> Au: 0,073 } mg Ag: 0,112 } cm^2 Al: 0,588 } </div> <div> Folienstärken wie in Spalte 1. Al-Folie jedoch um etwa 10° schräggestellt </div> </div>		

Es hat zunächst wenig Sinn, die statistischen Fehlergrenzen durch weitere Messungen einzuengen. Die zur Berechnung von P nötige S -Funktion ist nämlich nur für den nackten Kern ohne Berücksichtigung der Hülle tabelliert. Der Hülleneinfluß wurde bisher nur für Elektronenenergien unter 121 keV berechnet [10]. Er erniedrigt den S -Wert bei 121 keV um rund 10%. Der Hülleneinfluß nimmt mit wachsender Energie ab, dürfte bei 166 keV aber noch schätzungsweise 5% betragen.

* Dagegen scheint P von der Ordnungszahl der Streufolien abzuhängen: $|P(\text{Ag/Al})| > |P(\text{Au/Al})| > P(\text{Au/Ag})$. Allerdings liegt diese Z -Abhängigkeit noch innerhalb des statistischen Fehlers. Wenn sie reell ist, dürfte sie folgende Ursache haben: Unsere Anordnung wurde mit einer Hg-Pumpe evakuiert. Gelangt Hg-Dampf zu den Streufolien, so bildet sich Au- und Ag-Amalgam (Al ist durch eine Oxydschicht geschützt). Nach längerem Stehen trat tatsächlich eine Amalgamierung ein. Da Au und Hg fast gleiche Ordnungszahl Z haben, ändert sich dadurch das effektive \bar{Z} der Au-Folie nicht, während das der Ag-Folie zu größeren \bar{Z} -Werten verschoben wird. Das führt dazu, daß $P(\text{Au/Al})$ unbeeinflusst bleibt, während $P(\text{Au/Ag})$ zu klein und $P(\text{Ag/Al})$ zu groß ausfällt. Wenn dieser Amalgamierungsprozeß reell ist, darf man also nur die Au/Al-Messung (= 1. Tabellenzeile) auswerten. Das gewogene Mittel ändert sich (zufällig) nicht; die Fehlergrenzen werden natürlich etwas größer. Sie sind bei allen Resultaten in Klammern beigefügt.

** Ergänzung bei der Korrektur: HEINTZE (Z. Physik, im Druck) hat die Depolarisation durch Rückdiffusion gemessen, allerdings für einen größeren Energiebereich. Unter vergleichbaren Verhältnissen kommt er zum selben Ergebnis wie unsere Abschätzung.

Solange diese theoretische Frage nicht näher geklärt ist, besteht für Absolutmessungen genauer als etwa 5% kein Bedarf.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Bereitstellung von Mitteln, den Herren cand. phys. FELSNER und GÜTHNER für ihre tatkräftige Hilfe bei der Überwindung vieler technischer Schwierigkeiten. Die Abteilung Radioaktivität der Firma Buchler, Braunschweig, fertigte das Präparat an.

Literatur

- [1] BOTHE, W.: Z. Naturforsch. **4a**, 542 (1949). — [2] CAVANAGH, P.E., C.F. COLEMAN, B.W. RIDLEY and J.F. TURNER: Nuclear Physics (im Druck). — [3] WAARD, H. DE, u. O. J. POPPEMA: Physica **23**, 597 (1957). — [4] FRAUENFELDER, H., R. BOBONE, E. V. GOELER, N. LEVINE, H. R. LEWIS, R. N. PEACOCK, A. ROSSI and G. DE PASQUALI: Phys. Rev. **106**, 386 (1957). — [5] FRAUENFELDER, H., A. O. HANSON, N. LEVINE, A. ROSSI and G. DE PASQUALI: Phys. Rev. **107**, 643 (1957). — [6] GOLDBABER, M., L. GRODZINS and A. W. SUNYAR: Phys. Rev. **106**, 826 (1957). — [7] HEINTZE, J.: Z. Physik **148**, 560 (1957). — [8] JACKSON, J. D., S. B. TREIMAN and H. W. WYLD jr.: Nuclear Physics **4**, 206 (1957). — [9] MARSHALL, J., and A. G. WARD: Canad. J. Res. A **15**, 39 (1937). — [10] MOHR, C. B. O., and L. J. TASSIE: Proc. Phys. Soc. A **67**, 711 (1954). — [11] POHM, A. V., R. C. WADDELL and E. N. JENSEN: Phys. Rev. **101**, 1315 (1956). — [12] SHERMAN, N.: Phys. Rev. **103**, 1601 (1956). — [13] TOLHOEK, H. A.: Rev. Mod. Phys. **28**, 277 (1956). — [14] VISHNEVSKY, M. E., V. K. GRIGORIEV, V. A. ERGAKOV, S. J. NIKITIN, E. V. PUSHKIN and YU. V. TREBUKHOVSKY: Nuclear Physics **4**, 271 (1957).

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Das Spektrum der M - und L -Auger-Elektronen von $^{212}_{83}\text{Bi}$ und $^{208}_{81}\text{Tl}^*$

Von

K. RISCH

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Oktober 1957)

Mit einem magnetischen Linsenspektrometer wird das M - und L -Auger-Spektrum von $^{208}_{81}\text{Tl}$ und $^{212}_{83}\text{Bi}$ im Energiebereich von 1 bis 15 keV gemessen. Für 21 L -Auger-Linien werden die Energie und die Zuordnung angegeben. Die Erhöhung der effektiven Kernladungszahl für die einfach ionisierte M -Schale wird zu $\Delta Z = 0,8 \pm 0,2$ ermittelt. Das L -Auger-Spektrum wird in Teilspektren zerlegt, aus deren Intensitäten sich die Auger Ausbeuten für die L -Unterschalen zu: $a_1 = 0,07 \pm 0,02$; $a_2 = 0,46 \pm 0,09$; $a_3 = 0,59 \pm 0,05$; ergeben. Für das M -Auger-Spektrum wird im Energiebereich von 1,5 bis 4 keV eine Intensität von 28 Elektronen pro 100 $^{212}_{82}\text{Pb}$ -Zerfälle abgeschätzt.

1. Einleitung

Während über die K -Auger-Elektronen schon zahlreiche Ergebnisse bekannt sind, wurden bisher nur wenige L -Auger-Spektren ausgemessen und über M -Auger-Spektren liegen noch keine ausführlichen Untersuchungen vor.

Die L -Auger-Linien von $^{208}_{81}\text{Tl}$ und $^{212}_{83}\text{Bi}$ wurden bereits in früheren Arbeiten von BLACK¹ und FLAMMERSFELD² im Elektronenspektrum eines ThB-Präparates gefunden, aber erst in einer neueren Arbeit von BUTT³ als solche identifiziert. BUTT konnte acht verschiedene Linien nachweisen und versuchte sie zuzuordnen.

Zweck der vorliegenden Arbeit war es, diese Linien besser aufzulösen, zuzuordnen und die Auger-Ausbeuten der L -Unterschalen zu bestimmen. Während der Untersuchungen erschien eine Veröffentlichung von MOUSSA und BELLICARD⁴, in der für die L -Auger-Linien Energie, Zuordnung und Gesamtintensität angegeben werden. Nach Abschluß der Arbeit erschien eine weitere Publikation von BURDE und COHEN⁵, die demselben Problem gewidmet ist. Diese Autoren geben außerdem die Auger-Ausbeuten für die L -Unterschalen an. Die Schwierigkeiten jedoch,

* D 7 Göttinger Dissertation 1957.

¹ BLACK, D.H.: Proc. Cambridge Philos. Soc. **22**, 838 (1925).

² FLAMMERSFELD, A.: Z. Physik **114**, 227 (1939).

³ BUTT, D.K.: Proc. Phys. Soc. A **63**, 986 (1950).

⁴ MOUSSA, A., u. J.B. BELLICARD: C. R. Acad. Sci. Paris **242**, 1156 (1956).

⁵ BURDE, J., u. S.G. COHEN: Phys. Rev. **104**, 1085 (1956).

mit denen solche Untersuchungen verbunden sind, bringen es mit sich, daß die einzelnen Ergebnisse zum Teil stark voneinander abweichen. Daher ist die vorliegende Arbeit geeignet, die übrigen Resultate, soweit sie dasselbe Problem betreffen, nach der einen oder anderen Seite zu erhärten.

2. Apparatur

Für die Messungen wurde ein Linsenspektrometer vom Slätis-Siegbahn'schen Typ⁶ benutzt, das ursprünglich von WEBER⁷ erbaut wurde und für den vorliegenden Zweck verbessert werden mußte. Bei einem Präparatdurchmesser von 1 mm wurde ein Impulsaufhebungsvermögen von 0,7% erreicht. Der ausgenutzte Raumwinkel betrug 4% von 4π .

Als Detektor diente ein Geiger-Müller-Zählrohr mit einem dünnen Eintrittsfenster aus Zaponlack bzw. Formvar. Die Fensterfolie ließ bei 1 keV die ersten Elektronen ins Zählrohr treten. Sie wurde von einer Messingscheibe getragen, die auf einem Durchmesser von 8 mm auf 0,1 mm Dicke abgedreht und siebartig durchbohrt war. Die Durchlässigkeit der perforierten Fläche betrug in der Draufsicht 43%. Das Füllgas bestand aus einem Gemisch von 16 Torr Argon und 4 Torr Äthylen. Unter diesen Bedingungen arbeitete das Zählrohr noch zuverlässig.

Als Präparatträger wurde ein Stift aus V2A-Stahl benutzt, dessen polierte Stirnfläche von 1 mm Durchmesser in Th-Emanation aktiviert wurde. Wegen der Halbwertszeit des ThB ($T_{\frac{1}{2}} = 10,6$ Std) war für die Aufnahme des Spektrums eine größere Anzahl von Präparaten erforderlich. Um das Auflösungsvermögen und die Eichung möglichst konstant zu halten, mußten die einzelnen Präparate denselben Durchmesser haben und reproduzierbar justiert werden. Diese Bedingungen ließen sich bei dem kleinen Durchmesser von 1 mm am sichersten mit einem gut eingepaßten Metallstift erfüllen. Da sich außerdem die Rückstreuung im Energiebereich von mehreren Kiloelektronenvolt, auch bei dünnen (aber noch hinreichend stabilen) Präparatträgern nicht genügend vermeiden läßt, wurde auf eine solche Präparatunterlage verzichtet.

3. Aufnahme des Spektrums

Der Strom für das Magnetfeld wurde einer 300 V-Akkumulatorenbatterie entnommen und zeigte während der Messungen keine merklichen Schwankungen. Im Anschluß an jedes mit einem einzelnen Präparat ausgemessene Teilspektrum wurden die Eichlinien aufgenommen. Als

⁶ SLÄTIS, H., u. K. SIEGBAHN: Ark. Fysik **1**, 339 (1949).

⁷ WEBER, G.: Z. Naturforsch. **9a**, 115 (1954).

solche dienten die Konversionslinien *A*, *B*, *F* und *I* mit den von SIEGBAHN und EDVARSON⁸ angegebenen HQ -Werten. Die einzelnen Teilspektren überlappten sich genügend, um sie in ihrer Intensität aufeinander beziehen zu können. Außerdem wurden jedesmal mehrere Stellen aus dem kontinuierlichen Spektrum mitgemessen. Das zusammengesetzte Spektrum zwischen 1 und 25 keV zeigt Fig. 1. Der hier benutzte kleine Maßstab gestattete nicht, alle Meßpunkte wiederzugeben.

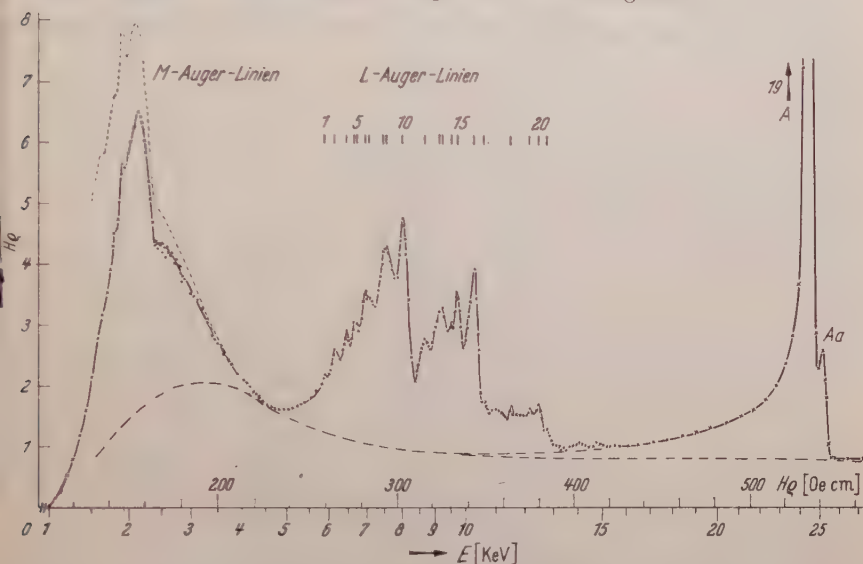


Fig. 1. Das Spektrum der *L*- und *M*-Auger-Elektronen eines ThB-Präparates (— Untergrund, Korrektur für die Absorption im Zählrohrfenster)

4. Die *L*-Auger-Linien

a) **Zuordnung.** Der graphischen Darstellung des Spektrums wurden insgesamt 21 *L*-Auger-Linien entnommen. Sie sind in Tabelle 1 zusammen mit den Ergebnissen anderer Autoren verzeichnet. In mehreren Fällen sind zwei nebeneinander liegende Linien nur schwach aufgelöst oder ihre Existenz ist aus der Breite eines Maximums geschlossen. Diese Stellen im Spektrum wurden einer häufigen Prüfung unterzogen. Dabei zeigte sich stets ein sehr ähnliches Bild, so daß die Existenz mindestens zweier Linien mit vergleichbarer Intensität an den betreffenden Punkten als sicher erscheint. Die Unsicherheit in der Energie beträgt für die gut aufgelösten Linien etwa ± 20 eV und für die weniger gut aufgelösten ± 40 eV.

Die in Tabelle 1 angegebene Zuordnung wurde auf Grund der Energie und der Intensität der einzelnen Linien vorgenommen. Als Kriterium

⁸ SIEGBAHN, K., u. K. EDVARSON: Nuclear Physics **1**, 137 (1956).

Tabelle 1. Energie und Zuordnung der L-Auger-Linien und Änderung der effektiven Kernladungszahl für die einfach ionisierte M-Schale

Bezeichnung der Linie bei			A MOUSSA und BELLICARD ⁴		B Vorliegende Arbeit					C BURDE und COHEN ⁵	
A	B	C	Gemessene Energie (keV)	Übergang	Gemessene Energie (keV)	Übergang	Berechnete Energie (keV)	ΔZ	$\Delta Z'$	Gemessene Energie (keV)	Übergang
a	1	A_2			5,88	$81-L_{III} M_I M_{III}$	5,89	1,1		5,95	$81-L_{III} M_I M_I$
	2	A_2'	6,150	$81-L_{III} M_{II} M_{III}$	6,16	$83-L_{III} M_I M_{III}$	6,13	0,7		6,18	$83-L_{III} M_I M_I$
		A_3				$81-L_{III} M_{II} M_{III}$	6,17	1,1		6,18	$81-L_{III} M_{II} M_I$
b	3	A_3'	6,435	$83-L_{III} M_{II} M_{III}$	6,45	$83-L_{III} M_{II} M_{III}$	6,43	0,8		6,44	$83-L_{III} M_{II} M_I$
	4	A_4	6,615	$81-L_{III} M_{III} M_{III}$	6,64	$81-L_{III} M_{III} M_{III}$	6,64	1,0		6,65	$81-L_{III} M_{III} M_I$
c	5		6,735	$81-L_{III} M_{II} M_V$	6,73	$81-L_{III} M_{II} M_V$	6,76	1,3			
d	6	A_4'	6,980	$83-L_{III} M_{II} M_V$	6,97	$83-L_{III} M_{III} M_{III}$	6,95	0,8		7,02	$83-L_{III} M_{II} M_I$
	7				7,06	$83-L_{III} M_{II} M_V$	7,04	0,8			
	8	A_5'			7,48	$83-L_{III} M_{III} M_{IV}$	7,45	0,7		7,49	$83-L_{III} M_{III} M_I$
	9		7,540	$83-L_{III} M_{III} M_V$	7,57	$83-L_{III} M_{III} M_V$	7,56	0,9			
f	10	A_6'	8,040	$83-L_{III} M_{IV} M_V$	8,05	$83-L_{III} M_{IV} M_V$	8,05	1,0		8,05	$83-L_{III} M_{IV} M_I$
g	11	B_1'	8,720	$83-L_{II} M_{II} M_{III}$	8,72	$83-L_{II} M_{II} M_{III}$	8,72			8,71	$83-L_{II} M_{II} M_I$
						$83-L_{III} M_I N_{III}$	8,71				
						$81-L_{II} M_{II} M_{IV}$	8,70				
	12	C_1'			9,19	$81-L_{II} M_{III} M_{IV}$	9,16			9,06	$81-L_I M_I M_{IV}$
	13	B_2'	9,200	$83-L_{II} M_{II} M_{IV}$	9,25	$83-L_{II} M_{II} M_{IV}$	9,22			9,28	$83-L_{II} M_{II} M_{IV}$
						$83-L_{II} M_{III} M_{III}$	9,24				
						$83-L_{III} M_{II} N_{IV}$	9,23				
						$83-L_{III} M_{II} N_V$	9,25				
	14				9,54	$83-L_{III} M_{III} N_{III}$	9,53				
						$83-L_{III} M_{II} N_{VI; VII}$	9,55				
						$81-L_{III} M_{III} N_{VI; VII}$	9,56				
						$81-L_{III} M_{IV} N_{III}$	9,53				
	15	C_1'	9,735	$83-L_{II} M_{III} M_{IV}$	9,73	$83-L_{II} M_{III} M_{IV}$	9,74			9,68	$83-L_I M_I M_{IV}$
		A_7				$81-L_{II} M_{IV} M_V$	9,73			9,68	$81-L_{III} M_{IV} N_{IV}$
i	16	A_7'	10,340	$83-L_{II} M_{IV} M_V$	10,34	$83-L_{II} M_{IV} M_V$	10,34	1,0		10,21	$83-L_{III} M_{IV} N_{IV}$
	17	C_2'			10,65	$83-L_{III} M_V N_{VI; VII}$	10,66			10,7	$83-L_I M_{IV} M_{IV}$
j	18	B_4	11,515	$81-L_{II} M_{IV} N_{III}$	11,55	$83-L_{II} M_{II} N_{IV}$	11,52			11,52	$81-L_{II} M_{IV} N_{II}$
						$83-L_{II} M_{II} N_V$	11,55				
						$81-L_{II} M_V N_{II}$	11,55				
k	19	B_6'	12,260	$83-L_{II} M_{IV} N_{III}$	12,25	$83-L_{II} M_V N_{II}$	12,28			12,22	$83-L_{II} M_{IV} N_{II}$
	20	B_6'	12,500	$83-L_{II} M_{IV} N_{IV}$	12,49	$83-L_{II} M_{IV} N_{IV}$	12,53			12,61	$83-L_{II} M_V N_{IV}$
	21				12,80	$83-L_{II} M_{IV} N_{VI; VII}$	12,84				

für die Intensität, mit der verschiedene Linien bzw. Liniengruppen auftreten können, dienten die in Spalte 5 bis 7 der Tabelle 2 angegebenen Werte für die Anzahl der L-Ionisationen pro 100 ThB-Zerfälle. Für die kinetische Energie $E_{L_o M_p M_q}$ und $E_{L_o M_p N_q}$ der $L_o M_p M_q$ - und $L_o M_p N_q$ -

Elektronen der Elemente 81 und 83 wurden Näherungswerte nach der Formel

$$E_{L_o X_p Y_q} = E_{L_o}^Z - E_{X_p}^Z - E_{Y_q}^{Z+1} \quad (1)$$

berechnet. Dabei bedeutet z.B. $E_{L_o}^Z$ die aus der Röntgenspektroskopie bekannte Ablösearbeit für die L_o -Schale des untersuchten Elementes mit der Kernladungszahl Z . $E_{Y_q}^{Z+1}$ trägt der Tatsache Rechnung, daß ein Auger-Elektron im allgemeinen ein zweifach ionisiertes Atom hinterläßt, so daß zu seiner Emission eine erhöhte Ablösearbeit aufzubringen ist. Die für Gl. (1) nötigen Ablösearbeiten wurden den Tabellen von HILL u. a.⁹ entnommen.

Die Linien 1 bis 10 enthalten die $L_{III}MM$ -Elektronen der Elemente 81 und 83. Nach Tabelle 2, Spalte 7 ist die Anzahl der L_{III} -Ionisation für $Z=83$ rund doppelt so hoch wie für $Z=81$. Da man für die beiden nahe beieinander liegenden Elemente etwa dasselbe Verhalten bezüglich der Fluoreszenz- und Auger-Ausbeuten annehmen kann, ist zu erwarten, daß die Linien, die zum Element 83 gehören, in etwa halber Intensität auch für das Element 81 vorhanden sind. Mit Hilfe dieses Kriteriums konnte in einigen Fällen eine eindeutige Zuordnung getroffen werden, wo dies an Hand der Energiewerte nicht möglich war. Die der Linie 10 analoge Linie für $Z=81$ machte sich auf der rechten Flanke der Linie 9 bemerkbar, sie konnte jedoch nicht aufgelöst werden.

Die Zuordnung der Linien 11 bis 21 wird dadurch sehr erschwert, daß sich in diesem Energiebereich jeweils mehrere Gruppen von Auger-Elektronen überlagern, s. Fig. 2. In den Fällen, in denen eine eindeutige Zuordnung nicht möglich schien, wurden die in Frage kommenden Übergänge angegeben. Die Linien 18 bis 21 müssen aus Intensitätsgründen ausschließlich den $L_{II}MN$ -Übergängen zugeschrieben werden (vgl. Fig. 2 und Tabelle 3).

b) Vergleich mit den Ergebnissen anderer Autoren. Die von MOUSSA und BELLICARD⁴ und in der vorliegenden Arbeit vorgenommene Zerlegung des Spektrums in Linien, die zum $^{212}_{83}\text{Bi}$ und $^{208}_{81}\text{Tl}$ gehören, wird von BURDE und COHEN⁵ weitgehend bestätigt. Die letztgenannten Autoren konnten das *L*-Auger-Spektrum von $^{208}_{81}\text{Tl}$ getrennt aufnehmen, indem sie die Koinzidenzen zwischen den *L*-Auger-Elektronen und den vom Präparat emittierten α -Teilchen untersuchten. Dadurch erhalten sie eine Anzahl Linien vom $^{208}_{81}\text{Tl}$, die sich im überlagerten Spektrum des $^{212}_{83}\text{Bi}$ und $^{208}_{81}\text{Tl}$ aus Intensitätsgründen nicht bemerkbar machen. Die Energiewerte und die Zuordnung der Linien stimmen bei MOUSSA und BELLICARD und bei der vorliegenden Arbeit recht gut überein, während die Ergebnisse von BURDE und COHEN oberhalb 8 keV davon abweichen.

⁹ HILL, R.D., E.L. CHURCH u. J.W. MIHELICH: Rev. Sci. Instrum. **23**, 523 (1952).

Insbesondere sprechen diese Autoren die intensive Linie, die hier mit 16 bezeichnet ist, nicht einem $L_{II}MM$ - sondern einem $L_{III}MN$ -Übergang zu. Dies müßte sich auf die später diskutierten Auger-Ausbeuten der L -Unterschalen auswirken.

5. Änderung der effektiven Kernladungszahl für die einfach ionisierte M -Schale

Der in Gl. (1) angesetzte Wert $E_{Y_q}^{Z+1}$ ist zu groß. Den richtigen Wert $E_{Y_q}^{Z+\Delta Z}$ ($0 < \Delta Z \leq 1$) erhält man, nachdem die Zuordnung einer Linie sichergestellt ist, aus der gemessenen Energie der Linie und den beiden Ablösearbeiten E_L^Z , E_X^Z . Für den effektiven Zuwachs ΔZ der Kernladungszahl haben BERGSTRÖM und HILL¹⁰ eine Definition angegeben, die im Falle der $L_oM_pM_q$ -Elektronen lautet:

$$\Delta Z = \frac{E_{M_q}^{Z+\Delta Z} - E_{M_q}^Z}{E_{M_q}^{Z+1} - E_{M_q}^Z} \quad (2)$$

ΔZ bezieht sich also auf die Ablösung eines M_q -Elektrons, wobei die M_p -Schale einfach ionisiert ist. Die so ermittelten Werte für ΔZ ($Z=83$) sind in Tabelle 1 verzeichnet. Unter Berücksichtigung der Unsicherheit, mit der die Energien der Linien bestimmt werden konnten, ergibt sich als Mittelwert $\Delta Z = 0,8 \pm 0,2$. Während für die M -Schale die Differenz $E_{M_q}^{Z+1} - E_{M_q}^Z$ zwischen 100 und 150 eV liegt, beträgt sie für die N -Schale nur noch 20 bis 40 eV. Das ist aber gerade die Meßgenauigkeit, mit der die Energiewerte bestimmt wurden, so daß bei den LMN -Elektronen, auch im Falle einer eindeutigen Zuordnung, die Änderung der N -Ablösearbeit bei einfach ionisierter M -Schale nicht angegeben werden kann.

MLADJENOVIC und SLÄTIS¹¹ erhielten bei den KLM -Auger-Elektronen eines ThB-Präparates für die M -Schale einen Wert von $\Delta Z = 0,6$. Ihr Fehler liegt, nach den Angaben über ihre Meßgenauigkeit zu schließen, in derselben Größenordnung wie hier, so daß die beiden Ergebnisse innerhalb dieser Fehlergrenze übereinstimmen. Jedoch ist zu bemerken, daß sich bei MLADJENOVIC und SLÄTIS ΔZ auf die Ablösung eines M -Elektrons bei einfach ionisierter L -Schale bezieht.

Für $Z=81$ ergeben die $L_{III}M_pM_q$ -Übergänge einen mittleren Wert $\Delta Z' = 1,1$. Das heißt, daß hier die Linien um 30 bis 40 eV nach kleineren Energien verschoben sind als man auf Grund der Linien vom Element 83 erwarten sollte. Es wird vermutet, daß diese Verschiebung im wesentlichen durch Coster-Kronig-Übergänge vom Typ $L_I L_{III} M_{IV}; V$ bedingt ist; denn wie Tabelle 2 zeigt, beruht praktisch die gesamte L_{III} -Ionisation vom Element 81 auf einem solchen Übergang. Dadurch ist die M -Schale bereits einfach ionisiert bevor das $L_{III}M_pM_q$ -Elektron

¹⁰ BERGSTRÖM, I., u. R.D. HILL: Ark. Fysik **8**, 21 (1954).

¹¹ MLADJENOVIC, M., u. H. SLÄTIS: Ark. Fysik **9**, 41 (1955).

emittiert wird, so daß schließlich ein in der M -Schale dreifach ionisiertes Atom zurückbleibt. Vorausgesetzt ist dabei allerdings, daß die erste M -Ionisation nicht schon auf eine weiter außen liegende Schale verlagert ist bevor das $L_{III} M_p M_q$ -Elektron die Hülle verläßt.

Ein anderer Effekt, der sich auf die Lage der Auger-Linien vom Element 81 auswirken kann und auf dem Rückstoß der Kerne $^{208}_{81}\text{Tl}$ infolge des vorangegangenen α -Zerfalles beruht, wird von BURDE und COHEN beschrieben. Da aber in der vorliegenden Arbeit alle Rückstoßkerne bei der Messung berücksichtigt werden — sowohl solche, die das Präparat in Richtung Spektrometerraum verlassen, wie diejenigen, die in die Präparatunterlage eindringen — sollte sich dieser Effekt hier nur in einer Linienverbreiterung und weniger in einer Linienverschiebung bemerkbar machen, wenn man die Angaben von BURDE und COHEN über die Bremszeit der Rückstoßkerne in der Präparatunterlage und über die Lebensdauer des 40 keV-Niveaus, das für die L -Auger-Elektronen des $^{208}_{81}\text{Tl}$ hauptsächlich verantwortlich ist, in Rechnung setzt. Jedoch kann diese Frage hier nicht mit Sicherheit entschieden werden.

6. Die L -Auger-Ausbeuten

Für das untersuchte ThB-Präparat lassen sich nur Mittelwerte bezüglich der Elemente 81 und 83 angeben. Aber wegen deren enger Nachbarschaft weicht ein solcher Mittelwert nur wenig von den Einzelwerten ab und ist daher von Interesse. — Der geringe Beitrag des $^{208}_{82}\text{Pb}$ spielt praktisch keine Rolle (Tabelle 2). — Zur Bestimmung der L -Auger-Ausbeuten müssen bekannt sein: Die Anzahl der Primärionisationen in den Unterschalen, ihre Verschiebung innerhalb der L -Schale durch Coster-Kronig-Übergänge und die Intensität der von den einzelnen Unterschalen ausgehenden Auger-Elektronen.

Tabelle 2. n_i = Anzahl der L_i -Primärionisationen pro 100 ThB-Zerfälle. n'_i = Anzahl der L_i -Ionisationen pro 100 ThB-Zerfälle nach den Coster-Kronig-Übergängen

Z	n_1	n_2	n_3	n'_1	n'_2	n'_3
81	15,67	1,57	0,16	3,59	4,55	9,26
82	0,86	0,46	0,97	0,20	0,62	1,47
83	6,17	9,09	17,67	1,42	10,26	21,25
Summe	22,70	11,12	18,80	5,21	15,43	31,98

Gesamtzahl der L -Ionisationen pro 100 ThB-Zerfälle: 52,62

Die Anzahl der Primärionisationen für die Elemente 81 und 83 wird von BUTT³ (FLAMMERSFELD²) übernommen (Tabelle 2). Die Coster-Kronig-Ausbeuten können den Messungen der vorliegenden Arbeit allein nicht entnommen werden; denn das Spektrum dieser Elektronen liegt größtenteils unterhalb 0,5 keV. Über die dadurch erforderlichen

Bestimmungsgrößen haben Ross u. a.¹² ausführlich referiert. Die Autoren ermittelten die Coster-Kronig-Ausbeuten für $^{210}_{83}\text{Bi}$ (RaE) und fanden $f_{12} = 0,19 \pm 0,05$; $f_{13} = 0,58 \pm 0,05$; $f_{23} = 0,06 \pm 0,14$. (Der Index bezieht sich auf die an dem Coster-Kronig-Übergang beteiligten L -Unterschalen; z.B. gibt f_{12} den Bruchteil der Primäronisationen in der L_I -Schale an, der auf die L_{II} -Schale verschoben wird.) Diese Werte wurden hier benutzt unter der Annahme $f_{23} = 0$. In Tabelle 2, Spalte 5 bis 7 sind die so erhaltenen L -Ionisationen pro 100 ThB-Zerfälle, die für die Ermitt-

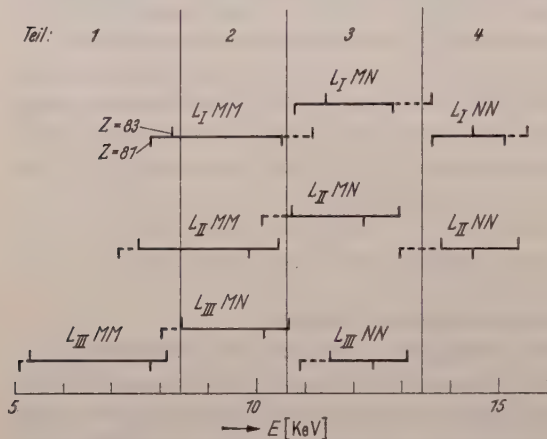


Fig. 2. Energiebereiche der Teilspektren für die L -Auger-Elektronen ($Z = 81; 83$)

lung der L -Auger-Ausbeuten maßgebend sind, verzeichnet. Ein Versuch, die Intensität der von den einzelnen Unterschalen ausgehenden Auger-Elektronen zu ermitteln, stößt auf Schwierigkeiten. Würde man das Spektrum nach der in Tabelle 1 angegebenen Zuordnung in Linien zerlegen, so könnten größere Fehler unterlaufen; denn verschiedene Liniengruppen treten im Spektrum nicht sichtbar in Erscheinung und würden somit vernachlässigt. Um dies zu vermeiden, wurde auf einem anderen Wege versucht, die Intensitäten der neun Teilspektren L_oMM , L_oMN und L_oNN zu ermitteln. Dazu wurde das L -Auger-Spektrum durch Trennschnitte hinter der Linie 10, 16 und bei 13,4 keV, hinter der Linie 21, in vier Teile zerlegt. Wie Fig. 2* zeigt, liegen die neun Teilspektren L_oMM , L_oMN und L_oNN , von gewissen Überlappungen abgesehen, jeweils innerhalb eines dieser vier Teile. An den Intensitäten der Teile 1 bis 3 wurden Korrekturen angebracht, welche die auftretenden Überlappungen berücksichtigen**. Damit ist, aus-

* Die unterbrochen gezeichneten Energiebereiche für die Teilspektren geben an, daß das betreffende Element (81 oder 83) mit geringerer Intensität beteiligt ist als das andere.

** Dabei dienten die aus der Linienzuordnung gewonnenen Erkenntnisse über die Gestalt einzelner Teilspektren als Anhaltspunkte. Die energiereichsten $L_I MM$ -Elektronen ($Z = 83$) liegen in Teil 3. Ihre Intensität wurde abgeschätzt durch einen Vergleich mit dem L -Auger-Spektrum des $^{210}_{83}\text{Bi}^{13,14}$, bei dem infolge stärkerer L_I -Ionisation bei 11 keV eine intensive Linie auftritt, die vermutlich zu dem Übergang $L_I M_{IV} M_V$ gehört.

¹² Ross, M. A. S., A. J. COCHRAN, J. HUGHES u. N. FEATHER: Proc. Phys. Soc. A 68, 612 (1955).

genommen die Intensität der $L_{III}MM$ -Elektronen, jeweils für zwei oder drei Teilspektren die Summe der Intensitäten bekannt. Die weitere Zerlegung erfolgte unter der Annahme, daß sich die Intensitäten der drei L_oNN -Spektren zueinander verhalten wie die drei Ionisationshäufigkeiten n'_i in Tabelle 2. Der dadurch begangene Fehler ist klein wegen des geringen Beitrages dieser Liniengruppen zur Auger-Ausbeute (Tabelle 3). Das nicht sichtbar in Erscheinung tretende $L_I MN$ -Spektrum wurde durch einen Vergleich mit dem *L*-Auger-Spektrum des $^{210}_{83}\text{Bi}$ ^{13, 14} abgeschätzt. Aus den bisher gewonnenen Intensitäten und aus der Gesamtintensität des *L*-Auger-Spektrums lassen sich dann die drei in Teil 2 vereinigten Spektren unter der Annahme aufteilen, daß für die drei *L*-Unterschalen das Intensitätsverhältnis der *LM**M*-Elektronen zu den *LMN*-Elektronen konstant ist.

Tabelle 3. Anzahl der Auger-Elektronen pro 100 ThB-Zerfälle

Elektronen- gruppe	Intensität	Elektronen- gruppe	Intensität	Elektronen- gruppe	Intensität
$L_I MM$	$1,1 \pm 0,4$	$L_{II} MM$	$5,1 \pm 0,6$	$L_{III} MM$	$13,7 \pm 0,2$
$L_I MN$	$0,35 \pm 0,1$	$L_{II} MN$	$1,75 \pm 0,1$	$L_{III} MN$	$4,8 \pm 0,3$
$L_I NN$	$0,05$	$L_{II} NN$	$0,16$	$L_{III} NN$	$0,32 \pm 0,05$
$I(L_I) = 1,5 \pm 0,5$		$I(L_{II}) = 7,0 \pm 0,7$		$I(L_{III}) = 18,8 \pm 0,6$	

Ein Vergleich mit der Konversionslinie $A + Aa$, der nach FLAMMERS-FELD² 20,9 Elektronen pro 100 ThB-Zerfälle entsprechen, liefert die absoluten Intensitäten für die neun Teilspektren (Tabelle 3). Diese Ergebnisse sind von den Coster-Kronig-Ausbeuten weitgehend unabhängig*. Die in Abschnitt 7 behandelte Rückstreuung an der Präparatunterlage ist hier schon berücksichtigt.

Aus den Werten der Tabelle 2 und 3 folgen für die Auger-Ausbeuten der Unterschalen

$$a_1 = \frac{I(L_I)}{n_1(81 + 82 + 83)}; \quad a_2 = \frac{I(L_{II})}{n'_2(81 + 82 + 83)}; \quad a_3 = \frac{I(L_{III})}{n'_3(81 + 82 + 83)};$$

die in Spalte 3 der Tabelle 4 angeführten Ergebnisse. (Die Fehler der a_i berücksichtigen die von Ross u. a. angegebene Unsicherheit der Coster-Kronig-Ausbeuten).

Benutzt man als vergleichendes Kriterium die Auger-Ausbeute a_3 , die mit dem geringsten relativen Fehler behaftet ist, so ist die Übereinstimmung der vorliegenden Arbeit mit den Werten von Ross u. a. am

* Ein geringer Einfluß kommt lediglich durch die erwähnten Vergleiche mit dem *L*-Auger-Spektrum des $^{210}_{83}\text{Bi}$ zustande.

¹³ KOBAYASHI, Y.: J. Phys. Soc. Jap. **8**, 440 (1953).

¹⁴ BASHILOV, A. A., B. S. DZHELEPOV u. L. S. CHERVINSKAYA: Izv. Akad. Nauk SSSR., Ser. Fiz. **17**, 428 (1953).

Tabelle 4. *Bisherige Ergebnisse für die Auger- und Coster-Kronig-Ausbeuten der Elemente 81 und 83*

	ROSS u. a. ¹⁸ $Z=83$	Vorliegende Arbeit $Z=81; 83$	KINSEY ¹⁵ * $Z=83$	BURDE und COHEN ⁹ $Z=81; 83$	MOUSSA und BELLICARD ⁴ $Z=81; 83$
a_3	$0,60 \pm 0,05$	$0,59 \pm 0,05$	0,67	0,54	
a_2	$0,62 \pm 0,14$	$0,46 \pm 0,09$	0,49	0,34	
a_1	$0,11 \pm 0,03$	$0,07 \pm 0,02$	0,07	0,15	
f_{12}	$0,19 \pm 0,05$		0,12	0,24	
f_{13}	$0,58 \pm 0,05$		0,70	0,52	
f_{23}	$0,06 \pm 0,14$				
a_L		$0,52 \pm 0,03$		$0,50 \pm 0,02$	0,61

besten. Eine Kombination der von KINSEY¹⁵ und BURDE und COHEN gefundenen Coster-Kronig-Ausbeuten mit den Messungen dieser Arbeit ergibt für a_3 eine noch stärkere Abweichung von den Ergebnissen jener Autoren. Der große Fehler für a_2 ist bedingt durch die unsichere Trennung der beiden überlagerten Teilspektren $L_{II}MM$ und $L_{III}MN$. Die Abweichungen gegenüber den Ergebnissen von BURDE und COHEN sind dadurch zu erklären, daß diese Autoren das gesamte Spektrum in einzelne Linien zerlegen und außerdem verschiedene Linien anderen Unterschalen zuordnen (Tabelle 1).

Die hier gefundene totale Auger-Ausbeute a_L des ThB-Präparates stimmt gut mit dem Wert von BURDE und COHEN überein. MOUSSA und BELLICARD erhalten dagegen durch einen Vergleich mit der Konversionslinie F insgesamt 32 L -Auger-Elektronen pro 100 ThB-Zerfälle. Das entspricht einer totalen L -Auger-Ausbeute von 0,61, die somit um 20% höher liegt als die beiden anderen Werte.

7. Rückstreuung an der Präparatunterlage

Die Intensitäten der L -Auger-Elektronen und der Konversionslinie $A + Aa$ wurden auf den Rückstreuereffekt korrigiert. BALFOUR¹⁶ gibt den Bruchteil der von einer dicken Präparatunterlage rückdiffundierenden Elektronen an für einen Energiebereich von 0 bis 105 keV mit der Kernladungszahl der Unterlage als Parameter. Dabei werden aber die rückgestreuten Elektronen in 2π -Geometrie gemessen, während in der vorliegenden Arbeit nur Elektronen nachgewiesen werden, die das Präparat unter einem mittleren Winkel von 38° gegen die Spektrometerachse verlassen. Eine Winkelabhängigkeit der von einer dicken Präparatunterlage rückgestreuten Elektronen gibt BROWNELL¹⁷ an, woraus sich

* Die Werte dieser Spalte sind bei ROSS u. a. zitiert.

¹⁵ KINSEY, B.B.: Canad. J. Res. A **26**, 421 (1948).

¹⁶ BALFOUR, J.G.: J. Sci. Instrum. **31**, 395 (1954).

¹⁷ BROWNELL, G.L.: Nucleonics **10**, No. 6, 30 (1952).

ergibt, daß im vorliegenden Fall der von BALFOUR ermittelte Prozentsatz an rückgestreuten Elektronen mit 1,5 zu multiplizieren ist. Nicht berücksichtigt ist dabei allerdings, daß BALFOUR mit diskreten Elektronenlinien arbeitet, während BROWNELL ein β -Spektrum benutzt. Die so ermittelten Korrekturen betrugen für die Konversionslinie $A + Aa$ 12% und für die Teile 1, 2 und 3 des *L*-Auger-Spektrums bzw. 4, 5 und 6%.

8. Das Spektrum der *M*-Auger-Elektronen

Über die *M*-Auger-Elektronen eines ThB-Präparates liegen bis jetzt keine Messungen vor. Dank der geringen Energie von 1 keV, bei der die Durchlässigkeit des Zählrohrfensters beginnt, war es möglich, einen Teil dieses Spektrums, das vermutlich von 0,65 keV bis rund 4 keV reicht, aufzunehmen. Bei 1,8 keV ist ein Maximum angedeutet, ein weiteres liegt bei 1,9 keV. Das Hauptmaximum bei 2,15 keV und seine linke Flanke zeigten beim Ausmessen deutliche Anzeichen für das Vorhandensein einer Mehrzahl nicht aufgelöster Linien. Zwischen 2,4 und 3,3 keV waren 10 Linien reproduzierbar zu erkennen, doch waren die Einsattelungen zwischen ihnen meistens nur wenig größer als der zu erwartende statistische Fehler, so daß auf ihre Wiedergabe in Fig. 1, die im Bereich der *M*-Auger-Elektronen nur $\frac{1}{3}$ aller Meßpunkte enthält, verzichtet wurde.

Auf Grund der verschiedenen Ionisationsprozesse wurden insgesamt 92 *M*-Ionisationen pro 100 ThB-Zerfälle ermittelt. Nach Tabelle 3 treten rund 20 *LM**M*-Übergänge auf, so daß 40 der insgesamt 92 Ionisationen in Form einer doppelten *M*-Ionisation vorliegen. — In einem Teil dieser Fälle könnte sogar eine dreifache Ionisation vorhanden sein, falls einem *LM**M*-Übergang ein Coster-Kronig-Übergang vom Typ $L_I L_{III} M_{IV; V}$ vorausging. — Gemäß den Ergebnissen des Abschnittes 5 erhalten die Auger-Elektronen, die von einem in der *M*-Schale doppelt ionisierten Atom emittiert werden, eine um 80 bis 120 eV höhere Energie. Infolgedessen müßte die zu einem bestimmten *M*-Auger-Übergang gehörende Linie deutlich aufspalten. Allerdings wäre zu erwarten, daß die unverschobene Linie etwa dreimal intensiver ist als die nach der höheren Energie verschobene Linie. Von einem Versuch, die beobachteten Linien bzw. Liniengruppen zuzuordnen, mußte abgesehen werden, weil sich an dem unvollständig vorliegenden Spektrum verschiedene Faktoren, insbesondere der Einfluß von Coster-Kronig-Übergängen, nicht überblicken lassen.

9. Absorption des Zählrohrfensters

Messungen über die Durchlässigkeit der hier benutzten dünnen Fensterfolien sind nicht bekannt. Die von LANE und ZAFFARANO¹⁸

¹⁸ LANE, R. O., u. D. J. ZAFFARANO: Phys. Rev. **94**, 960 (1954).

angegebenen Kurven reichen nur bis zu einer Durchlässigkeitsgrenze von 2,3 keV. Wählt man aber für diese Kurven die jeweilige Durchlässigkeitsgrenze als Energieeinheit, so lassen sie sich angenähert zur Deckung bringen. Unter der Annahme, daß diese so erhaltene Kurve auch noch für die Durchlässigkeitsgrenze von 1 keV gilt, wurde das Spektrum im Energiebereich von 1,5 bis 4 keV auf die Absorption im Zählrohrfenster korrigiert (Fig.1).

10. Intensität der *M*-Auger-Elektronen

Die Messungen lassen kein sicheres Anzeichen über die obere Energiegrenze, bei der das *M*-Auger-Spektrum mit einer merklichen Intensität beginnt, erkennen. Nimmt man an, daß M_1PP -Elektronen ($Z=83$) noch einen meßbaren Beitrag liefern, und legt man diesen Elektronen eine dreifach ionisierte *M*-Schale zugrunde (s. oben), so ergäbe sich als obere Grenze eine Energie von 4,3 keV, die aber infolge der gemachten Annahmen wohl etwas zu hoch liegt. Das *L*-Auger-Spektrum endet, von rückgestreuten Elektronen abgesehen, bei 5,1 keV. Zwischen 4,5 und 4,3 keV steigt das Spektrum aber schon stark an.

Versucht man diesen Anstieg allein auf rückgestreute *L*-Auger-Elektronen zurückzuführen, so könnte das Maximum in der Energieverteilung dieser rückgestreuten Elektronen nicht oberhalb 4,3 keV liegen. Das hieße aber, daß dieses Maximum, wenn man die intensivste *L*-Auger-Linie bei 8 keV für seine Lage auf der Energieskala verantwortlich macht, unterhalb 55% der Primärenergie läge. Das widerspricht den Elektronenstrahlversuchen von STERNGLASS¹⁹, so daß dieser anwachsende Untergrund eine andere Ursache haben muß.

Unterhalb 4,5 keV könnten δ -Strahlen, die durch die α -Strahlen des $^{212}_{84}\text{Po}$ in der Präparatunterlage ausgelöst werden, einen Anstieg im Untergrund verursachen. Ein weiterer Beitrag, der durch die α -Strahlen des $^{212}_{83}\text{Bi}$ bedingt ist, käme unterhalb 3 keV noch hinzu. Eine Abschätzung dieser zu erwartenden Intensitäten an δ -Strahlen bestätigt etwa die in Fig.1 angenommene Erhöhung des Untergrundes, wenn die Absorption im Zählrohrfenster noch berücksichtigt wird.

Mit diesem Untergrund erhält man im Bereich von 1,5 bis 4 keV 28 *M*-Auger-Elektronen pro 100 ThB-Zerfälle. Das sind (vgl. Tabelle 3) rund ebensoviele, wie insgesamt an *L*-Auger-Elektronen auftreten.

Herrn Professor Dr. A. FLAMMERSFELD gilt mein Dank für die Anregung zu dieser Arbeit und die ständige Unterstützung. Zur Durchführung der Arbeit wurden Mittel der Deutschen Forschungsgemeinschaft benutzt.

¹⁹ STERNGLASS, E. J.: Phys. Rev. **95**, 345 (1954).

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Münster (Westf.)

Magnetische Eigenschaften und elektronenmikroskopische Struktur elektrolytisch niedergeschlagener dünner Schichten aus Nickel-Eisen-Legierungen

Von

LUDWIG REIMER

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 20. September 1957)

Nach elektronenmikroskopischen Untersuchungen zeigen elektrolytisch niedergeschlagene Schichten aus Ni-Fe-Legierungen einen sehr feinkristallinen Aufbau. Nach früheren Untersuchungen des Verfassers [1] sollte dies bei den dünnen Schichten mit Eindomänenstruktur zu sehr geringen Koerzitivkräften infolge Kristallanisotropie führen. Man beobachtet aber mit steigender Eisenkonzentration einen Anstieg der maximalen Koerzitivkraft, der darauf schließen läßt, daß in diesen Schichten sehr geringe Formanisotropien eine Erhöhung der Koerzitivkraft hervorrufen. Die magnetischen Eigenschaften der dickeren Schichten (Schichtdicke größer als 500 Å) lassen sich qualitativ mit der klassischen Spannungstheorie erklären.

Einleitung

Über die magnetischen Eigenschaften dünner Ni- und Fe-Schichten, die sowohl elektrolytisch niedergeschlagen als auch im Hochvakuum aufgedampft wurden, ist bereits in früheren Veröffentlichungen des Verfassers berichtet worden [1]. Die magnetischen Eigenschaften der Schichten, die so dünn sind, daß sie Eindomänenstruktur aufweisen, werden nach diesen Untersuchungen vornehmlich durch die Form und Ausdehnung der Kristallite in Schichtebene bestimmt, die aus elektronenmikroskopischen Aufnahmen der gleichen Schichten zu entnehmen sind, welche auch magnetisch vermessen wurden. Wenn die Schicht aus Einkristallamellen besteht (Ausdehnung der Kristallite in Schichtebene größer als die Schichtdicke), so wird die Größe der Koerzitivkraft bei Eindomänenstruktur der Schichten (unterhalb etwa 1000 Å Schichtdicke) durch Formanisotropie bestimmt sein [2], [3], [4]:

$$H_c = 0,5 (N_l - N_0) J_s. \quad (1)$$

$(N_l - N_0)$ bedeutet dabei die Differenz der Entmagnetisierungsfaktoren in der kürzesten und längsten Kristallitausehnung innerhalb der

Schichtebene. Die Koerzitivkraft ist nach (1) also proportional der Sättigungsmagnetisierung J_s .

Sind dagegen die Schichten sehr feinkristallin, so ist die Koerzitivkraft nach der Formel

$$H_c = 2K/J_s \quad (2)$$

aus der Kristallenergie K zu berechnen.

Da man in Schichten aus Ni-Fe-Legierungen nach Messungen an kompaktem Material sowohl Änderungen der Sättigungsmagnetisierung J_s als auch der Kristallenergie K mit der Zusammensetzung zu erwarten hat [5], wurden die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Versuche an elektrolytisch niedergeschlagenen Schichten dieser Legierungen durchgeführt, um die Ergebnisse an reinen Nickel- und Eischichten zu bestätigen.

Herstellung der Schichten

Die elektrolytische Abscheidung der Ni-Fe-Legierungen erfolgte aus Bädern folgender Zusammensetzung, die von RAUB und WALTER [6] erprobt wurden: Das Nickelgrundbad bestand aus 60 g NiSO_4 , 15 g Borsäure und 15 g K-Na-Tartrat auf 1000 cm^3 Wasser. Zu diesem Bad wurden verschiedene Mengen an FeSO_4 zugesetzt. Bereits RAUB und WALTER wiesen darauf hin, daß die Eisenkonzentration im Niederschlag größer als im Elektrolyten ist. Da das Bad also an Eisen verarmt, wurde es bei der Schichtherstellung öfters erneuert. Da es bei den hier beschriebenen Versuchen nur auf die ungefähre Zusammensetzung des Niederschlages ankam, wurde die Fe-Konzentration im Niederschlag an etwa 2000 Å dicken Schichten aus der gemessenen Sättigungsmagnetisierung bestimmt. Es wurden Schichten aus Ni-Fe-Legierungen mit 60, 77, 90 und 98,5 % Nickel hergestellt. Als Schichtunterlage wurde stets ebenfalls elektrolytisch niedergeschlagenes Kupfer (5 μ dick) verwendet — die gleiche Unterlage, die auch bei den früher beschriebenen Messungen an reinen Nickel- und Eischichten benutzt wurde [1].

Für die elektronenoptische Untersuchung der Schichten kann man mit Hilfe einer Chromsäurelösung die Kupferunterlage weglösen und wie bei den reinen Nickel- bzw. Eischichten [7] diese auf elektronenmikroskopischen Objektträgern freitragend auffischen. Die Elektronenbeugung (in Durchstrahlung) derartig präparierter Schichten zeigte bei einer 77%igen Ni-Fe-Legierung noch das Beugungsbild eines reinen Ni-Fe-Mischkristalls, während bei der 60%igen Legierung bereits neben den Interferenzringen des kubisch flächenzentrierten Mischkristalls noch solche des reinen Eisens (kubisch raumzentriert) zu beobachten waren. Bei dieser hohen Eisenkonzentration hat man also bei der Abscheidung keine vollständige Legierungsbildung mehr vorliegen.

Meßergebnisse und Diskussion

Die ballistisch gemessenen Koerzitivkräfte in Abhängigkeit von der Schichtdicke (Fig. 1) für Schichten mit verschiedener Nickelkonzentration kann man folgendermaßen deuten:

Der Verlauf der Koerzitivkraft für die 90- und 98,5%igen Schichten kann als eine Überlagerung aufgefaßt werden. Der erste Abfall der Koerzitivkraft von größeren Schichtdicken bis herunter zu etwa 1000 Å ist auf eine Abnahme der inneren Spannungen σ_i zurückzuführen, die

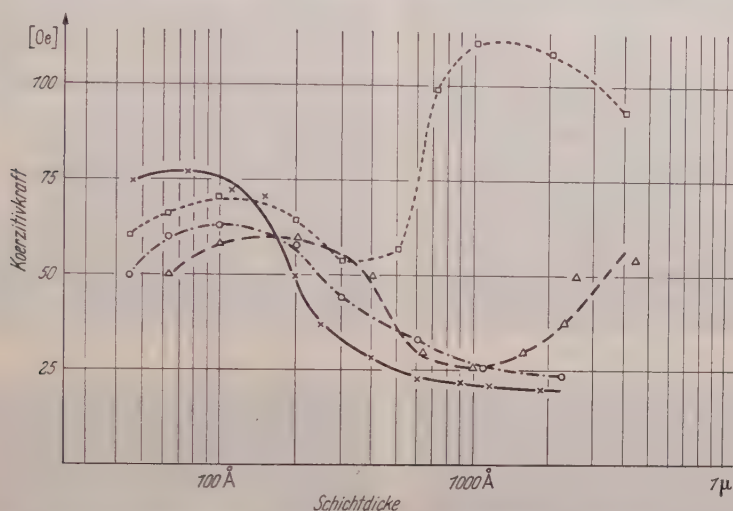


Fig. 1. Schichtdickenabhängigkeit der Koerzitivkraft elektrolytisch niedergeschlagener Schichten aus Ni-Fe-Legierungen verschiedener Zusammensetzung: x 60% Ni, o 77% Ni, Δ 90% Ni und □ 98,5% Ni

sich erst von einer bestimmten Schichtdicke ab ausbilden. In diesem Schichtdickenbereich lassen sich die magnetischen Eigenschaften noch durch die klassische Spannungstheorie beschreiben. Für die Koerzitivkraft gilt nach dieser Theorie [8]:

$$H_c = p_c \lambda_{\infty} \sigma_i / J_s \quad (\lambda_{\infty} = \text{Sättigungsmagnetostriktion}). \quad (3)$$

Bei der 98,5%igen Ni-Fe-Legierung ist die Magnetostriktion größer als diejenige der 90%igen, was die größeren Werte der Koerzitivkraft oberhalb 1000 Å für erstere qualitativ erklärt. Der erneute Anstieg der Koerzitivkraft nach Durchlaufen eines Minimums ist durch die Ausbildung der Eindomänenstruktur bedingt (s. unten).

Bei den Legierungen mit 60 und 77% Ni ist die Koerzitivkraft bei dicken Schichten relativ niedrig. Man kann dies ebenfalls an Hand von Gl. (3) interpretieren. Der Wert der Magnetostriktion dieser Legierungen

ist sehr klein und ferner erhöht sich die Sättigungsmagnetisierung. Beides wirkt nach (3) im Sinne einer Erniedrigung der Koerzitivkraft.

Auch die Meßergebnisse der Remanenz (Fig. 2) (aufgetragen ist die relative Remanenz J_R/J_s) sind bei dicken Schichten durch die verschiedenen Werte der Sättigungsmagnetostriktion zu verstehen. Da die Schichten gegen die Unterlage Zugspannungen aufweisen, stellt sich der Magnetisierungsvektor im Punkte der Remanenz bei der 98,5%igen und 90%igen Legierung mit negativer Magnetostriktion in Richtung der größten Stauchung ein — also quer zur Schichtebene —, was zu dem beobachteten Abfall der Remanenz bei dicken Schichten führt. Bei

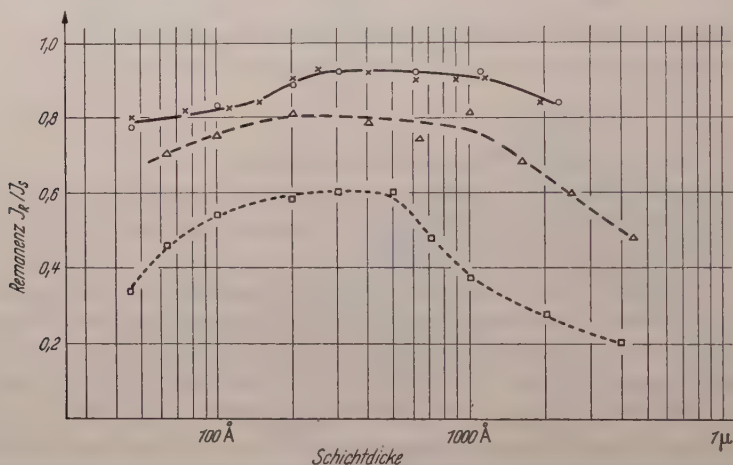


Fig. 2. Relative Remanenz J_R/J_s elektrolytisch niedergeschlagener Schichten aus Ni-Fe-Legierungen verschiedener Zusammensetzung: × 60% Ni, o 77% Ni, Δ 90% Ni und □ 98,5% Ni

positiver Magnetostriktion (77- und 60%ige Legierung) bleibt der Magnetisierungsvektor unter der Wirkung von Zugspannungen dagegen in Schichtebene, womit die hohen Werte der Remanenz bei den dicken Schichten dieser Legierungen erklärt werden können.

Die Maximalwerte der Koerzitivkraft im Gebiete der Eindomänenstruktur bei sehr dünnen Schichten erscheinen sehr niedrig, wenn man sie mit denjenigen von reinen Nickelschichten vergleicht, die elektrolytisch auf der gleichen Unterlage abgeschieden wurden und Maximalwerte von etwa 250 Oe zeigten [1]. Diese hohen Werte werden durch Formanisotropie hervorgerufen, weil diese Schichten aus ausgedehnten Einkristallamellen bestehen. Sobald nur etwas Eisen mit abgeschieden wird, ist das orientierte Aufwachsen der Schicht auf den Kristalliten der Kupferunterlage gestört. Dies soll an Hand von elektronenmikroskopischen Dunkelfeldaufnahmen in Fig. 3 und 4 gezeigt werden. Wir beschränken uns auf die Wiedergabe der Dunkelfeldabbildungen, da man

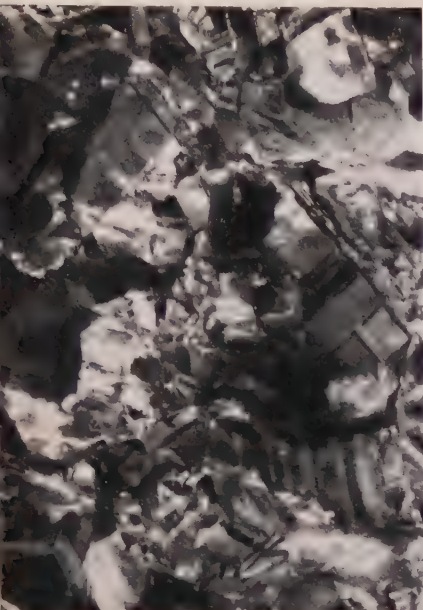


Fig. 3. 100% Ni



Fig. 4. 98,5% Ni



Fig. 5. 90% Ni



Fig. 6. 77% Ni

Fig. 3–6. Elektronenmikroskopische Dunkelfeldaufnahmen von elektrolytisch niedergeschlagenen Schichten aus Ni-Fe-Legierungen mit Schichtdicken von etwa 75 Å auf Elektrolytkupfer als Unterlage.
(Vergr. 12000mal)

an Hand dieser Aufnahmen wesentlich besser die Kristallitgrößen erkennen kann als aus den entsprechenden Hellfeldaufnahmen*. Wie die weiteren Fig. 5 und 6 einer 90- und 60%igen Ni-Fe-Legierung zeigen, liegt bei höheren Eisengehalten der Schicht ein sehr feinkristalliner Aufbau vor. Eine ähnliche Struktur der Schichten wurde an reinen Nickelschichten beobachtet, wenn diese auf einer feinkristallinen Kupferaufdampfschicht als Unterlage elektrolytisch abgeschieden wurden [1]. Bei diesen Schichten wurde nur ein Maximalwert der Koerzitivkraft bei Ein-

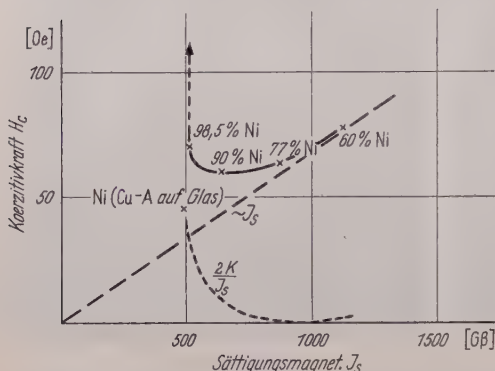


Fig. 7. Die auftretenden Maximalwerte der Koerzitivkraft bei Schichtdicken kleiner als 500 Å aus Fig. 1 aufgetragen gegen die Sättigungsmagnetisierung. Zum Vergleich Meßwerte einer reinen Ni-Schicht auf einer aufgedampften Kupferschicht als Unterlage [1]. Die maximale Koerzitivkraft der reinen Ni-Schicht auf der gleichen Elektrolytkupfer-Unterlage betrug 250 Oe

domänenstruktur von 45 Oe beobachtet. Die Temperaturabhängigkeit der Koerzitivkraft sprach nach (2) eindeutig für Kristallanisotropie als Ursache der Koerzitivkraftherhöhung.

In Fig. 7 ist der beobachtete Maximalwert der Koerzitivkraft bei Eindomänenstruktur gegen die Sättigungsmagnetisierung aufgetragen. Wegen der feinkristallinen Struktur zeigt die 98,5%ige Ni-Fe-Schicht einen wesentlich kleineren Wert der Koerzitivkraft als der an reinen Nickelschichten

auf der gleichen Unterlage beobachtete Wert von 250 Oe. Der Wert kommt demjenigen der feinkristallinen Nickelschicht auf Kupferaufdampfschicht als Unterlage (45 Oe) wesentlich näher. Man sollte auf Grund dieses Ergebnisses annehmen, daß die Koerzitivkraft der Schichten mit höherem Eisengehalt wegen ihrer noch feinkristallineren Struktur gemäß (2) wie $2K/J_s$ abfallen (gestrichelte Kurve in Fig. 7). (Für K ist hier wie in früheren Arbeiten des Verfassers der vielkristalline Mittelwert der Kristallenergie eingesetzt, um die regellose Verteilung der Kristallite zu berücksichtigen.) Stattdessen wird aber ein weiterer Anstieg der Koerzitivkraft mit wachsender Eisenkonzentration beobachtet, den man annähernd durch eine Gerade proportional zu J_s approximieren kann. Trotz des feinkristallinen Aufbaues dieser Schichten überwiegt also die Formanisotropie. Wegen der geringen Kristall-

* Diese Dunkelfeldabbildungen werden durch seitliches Verschieben der Objektivaperturblende erhalten. Es gelangt dann nur diejenige Strahlung zur Abbildung, die durch Braggsche Reflexion an den Netzebenen der Kristallite zur Seite abgelenkt wird.

anisotropie in den untersuchten Schichten mit höherem Eisengehalt wäre es denkbar, daß in diesen Schichten wirklich der von KITTEL [2], [3], [4] diskutierte Fall auftritt, daß nämlich die Schicht aus ausgedehnten Eindomänenbereichen ungeachtet der Kristallitgrenzen aufgebaut ist, deren Magnetisierungsvektor in Schichtebene liegt. In diesem Zusammenhang seien interessante Arbeiten von FOWLER, FRYER und STEVENS [9], [10] erwähnt, die mit Hilfe des lichtoptischen Faraday- und Kerr-Effektes großflächige Domänen in aufgedampften Ni-Fe-Schichten (Schichtdicke größer als 500 Å!) sichtbar gemacht haben, bei denen die Magnetisierung in Schichtebene liegt. Allerdings ist diesen Autoren noch nicht gelungen, die Beobachtungen in den für die Eindomänentheorie interessanten Schichtdickenbereich unterhalb 500 Å auszudehnen.

Nach Formel (1) entspricht der in Fig. 7 eingezeichneten Geraden ein $(N_i - N_0) = 0,14$. Diese geringe Differenz der Entmagnetisierungsfaktoren wäre rein formal durch ein Rotationsellipsoid mit einem Achsenverhältnis 1:1,03 realisiert. Es sind demnach zwei mögliche Erklärungen offen, zwischen denen nicht eindeutig entschieden werden kann:

1. Können derartig kleine Abweichungen von der Kugelgestalt durchaus an den Einzelkristalliten der Schicht auftreten (Kristallitgröße gleich Größe der Eindomänenbereiche) oder 2. wird bei ausgedehnten Eindomänenbereichen ungeachtet der Kristallitgrenzen wie bei den Beobachtungen obiger Autoren [9], [10] an dicken Ni-Fe-Schichten der Magnetisierungsvektor stets in Schichtebene verbleiben und die Umagnetisierung muß gegen den geringen Unterschied in der Entmagnetisierungsenergie durch verschiedene Ausdehnung des Eindomänenbereiches in Schichtebene erfolgen.

Ungeachtet einer Entscheidung für eine der beiden Erklärungsmöglichkeiten kann jedoch gesagt werden, daß derartig geringe Formanisotropien zur Erhöhung der Koerzitivkraft beitragen können, wenn nur die Kristallanisotropie hinreichend klein ist.

Literatur

- [1] REIMER, L.: Z. Naturforsch. **11a**, 649 (1956); **12a**, 550, 558 (1957). — Z. Physik **148**, 527 (1957). — [2] NÉEL, L.: C. R. Acad. Sci. Paris **224**, 1488 (1947). — [3] KITTEL, C.: Phys. Rev. **70**, 965 (1946). — [4] STONER, E.C., and E.P. WOHLFARTH: Nature (Lond.) **160**, 650 (1947). — [5] BOZORTH, R.M.: Ferromagnetism. London 1953. — [6] RAUB, E., u. E. WALTER: Z. Elektrochem. **41**, 169 (1935). — [7] REIMER, L.: Z. Metallkde. **47**, 631 (1956). — [8] BECKER, R.: Ferromagnetismus. Berlin: Springer 1939. — [9] FOWLER, C.A., and E.M. FRYER: Phys. Rev. **104**, 552 (1956). — [10] FOWLER, C.A., E.M. FRYER and J.R. STEVENS: Phys. Rev. **104**, 645 (1956).

Zur Quantenmechanik des kräftefreien Teilchens

Von

M. BORN* und W. LUDWIG**

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 27. September 1957)

Es wird die Bewegung eines Teilchens auf einer geradlinigen Strecke betrachtet, an deren Enden es ohne Energieverlust reflektiert wird; die Anfangslage und Anfangsgeschwindigkeit sind so scharf gegeben, wie es die Unschärferelation erlaubt. Einfache, schnell konvergente Reihen sind für zwei Grenzfälle bekannt; 1. das Teilchen ist noch angenähert lokalisierbar (t klein); 2. das Teilchen ist nicht mehr lokalisierbar, die Bewegung wird durch Superposition von Eigenschwingungen beschrieben (t groß). Im folgenden wird gezeigt, daß mit Hilfe einer θ -Transformation eine exakte Formel aufgestellt werden kann, welche für alle Zeiten t gilt und sich in den Grenzfällen (t klein, t groß) auf die bekannten Ausdrücke reduziert.

Einleitung

Die folgenden Überlegungen beziehen sich auf das einfachste quantenmechanische Problem, die Bewegung eines Massenteilchens auf einer geraden Linie zwischen zwei festen Punkten, wo es elastisch reflektiert wird.

Diese Bewegung wird gewöhnlich beschrieben mit Hilfe von stehenden Wellen, die Lösungen der zugehörigen Schrödinger-Gleichung sind. Das ist angemessen für die Behandlung des statistischen Gleichgewichts in einer Gesamtheit vieler solcher Systeme. Will man aber die Bewegung eines einzelnen Teilchens (mit der durch die Unschärfe-Relationen möglichen Genauigkeit) verfolgen, so ist das Fouriersche Verfahren der Superposition von stehenden Wellen von geringem Nutzen; man kann zwar ein Wellenpaket, das einer scharf gegebenen Anfangslage entspricht, aus den stehenden Wellen bilden, aber die zugehörige Reihe konvergiert äußerst langsam und gibt kein anschauliches Bild des Zerfließens des Wellenpaketes.

Um den Vorgang des Zerfließens wirklich zu verfolgen, muß man ein anderes Lösungsverfahren benutzen, die d'Alembertsche Integraldarstellung¹. Beide Methoden sind natürlich mathematisch völlig äqui-

* Anschrift: Bad Pyrmont, Marcardstraße 4.

** Jetzige Anschrift: TH Aachen, Institut für physikalische Grundlagen der Reaktorwerkstoffe, Templergraben 55.

¹ BORN, M.: Kgl. danske Vidensk. Selsk., mat.-fys. Medd. **30**, 2 (1955). Diese Arbeit enthält die Antwort auf eine Veröffentlichung EINSTEINS, in der dieser seine bekannten Einwände gegen die statistische Deutung der Quantenmechanik mit Hilfe des hier behandelten Modells zu begründen versucht hat.

valent, und die eine Lösung kann in die andere durch eine ϑ -Transformation umgerechnet werden.

Es erhebt sich die Frage: gibt es nicht eine Form der Lösung, die diese beiden Darstellungen — wir wollen sie Wellendarstellung und Teilchendarstellung nennen — in einem Ausdruck zusammenfaßt, der für kleine Zeiten in die Teilchendarstellung, für große Zeiten in die Wellendarstellung übergeht?

Im folgenden soll eine solche Lösung konstruiert werden und zwar mit Hilfe einer Methode, die von P.P. EWALD² für ein ganz anderes Problem in der Theorie der elektrostatischen und elektrodynamischen Gitterpotentiale ersonnen worden ist. Man erhält so recht durchsichtige Formeln für die Wellenfunktion, die den Übergang von dem nahezu individuellen Anfangszustand in den verwaschenen Endzustand beschreiben. Die Ausdrücke für die Wahrscheinlichkeitsdichten sind allerdings nur in den Grenzfällen einfach.

1. Wellendarstellung

Die Wellenfunktion $\Psi(x, t)$ hat im Intervall $0 \leq x \leq l$ der Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar \dot{\Psi} = H\Psi, \quad H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \quad (1.1)$$

zu genügen mit den Randbedingungen

$$\Psi(0, t) = 0, \quad \Psi(l, t) = 0 \quad (1.2)$$

und der Anfangsbedingung: $\Psi(x, 0)$ ist eine beliebig vorgegebene Funktion im Grundintervall.

Setzt man

$$\Psi(x, t) = \Phi(x, t) - \Phi(-x, t) \quad (1.3)$$

und fordert, daß Φ periodisch ist in x mit der Periode $2l$,

$$\Phi(x + 2l, t) = \Phi(x, t), \quad (1.4)$$

so sind die Randbedingungen (1.2) erfüllt.

Zur Beschreibung eines Anfangszustandes, der einer fast scharfen Lage des Teilchens bei $x = x_0$ mit der mittleren Geschwindigkeit v_0 entspricht, wird man von der Funktion

$$g(x) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_0} \right)^{\frac{1}{2}} e^{-\left(\frac{x-x_0}{2\sigma_0} \right)^2 + \frac{i}{\hbar} m v_0 (x-x_0)} \quad (1.5)$$

² EWALD, P.P.: Ann. Phys. **64**, 253 (1921).

ausgehen; sie stellt eine ebene Welle dar, die mit einer Gauß-Funktion der Breite $(\overline{\Delta x^2})^{\frac{1}{2}} = \sigma_0$ moduliert ist. Ist τ_0 die Breite der Geschwindigkeitsverteilung, definiert durch $(\overline{\Delta p^2})^{\frac{1}{2}} = m\tau_0$, so gilt für dieses Wellenpaket (1.5) die Heisenbergsche Unschärferelation als Gleichung:

$$\sigma_0 \tau_0 = \frac{\hbar}{2m}. \quad (1.6)$$

Jedoch genügt (1.5) weder den Randbedingungen (1.2) noch der Periodizitätsforderung (1.4). Um das zu erreichen, hat man zu setzen

$$\Phi(x, 0) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} g(x + 2kl). \quad (1.7)$$

Ist $\sigma_0 \ll l$, wie wir es immer voraussetzen wollen, so hat die nach (1.3) aus (1.7) gebildete Funktion $\Psi(x, 0)$ nur ein enges Maximum bei $x = x_0$.

Bestimmt man nun $\Phi(x, t)$ als periodische Lösung von (1.1) mit der Periode $2l$ und der Anfangsbedingung (1.7) längs der ganzen x -Achse, so erhält man nach (1.3) die gesuchte Lösung im Grundintervall als Superposition zweier gegeneinander laufender Wellenzüge.

Wird die Lösung $\Phi(x, t)$ in eine Fourier-Reihe

$$\Phi_W(x, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_n e^{-\frac{i}{\hbar}(E_n t + p_n x)} \quad (1.8)$$

entwickelt, so gibt Einsetzen in (1.1)

$$p_n = m v_n = m v_1 n; \quad E_n = \frac{m v_1^2}{2} \cdot n^2, \quad (1.9)$$

worin

$$v_1 = \frac{\pi \hbar}{m l} \quad (1.10)$$

eine fundamentale „Quantengeschwindigkeit“ bedeutet. Für den Fourier-Koeffizienten erhält man unter Benutzung von (1.7)

$$A_n = \frac{1}{2l} \int_{-\infty}^{+\infty} g(x) e^{\frac{i}{\hbar} p_n x} dx. \quad (1.11)$$

Für die durch (1.5) gegebene Funktion $g(x)$ kann man die Integration elementar ausführen. Setzt man das Ergebnis in (1.8) ein, so erhält man

$$\Phi_W(x, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \Phi_n(x, t) \quad (1.12)$$

mit

$$\Phi_n(x, t) = A_0 \cdot e^{-\left(\frac{v_0 - n v_1}{2 \tau_0}\right)^2 - i \chi_n(x, t)} \quad (1.13)$$

Hier ist

$$A_0 = \frac{(\sqrt{2\pi\sigma_0})^{\frac{1}{2}}}{\sqrt{2l}} \quad (1.14)$$

eine Konstante und

$$\chi_n(x, t) = \frac{1}{\hbar} [E_n t - p_n(x - x_0)] \quad (1.15)$$

die Phase der n -ten harmonischen Partialwelle.

Für das folgende ist es angebracht, die Funktion $\Phi_W(x, t)$ auch als Integral darzustellen. Man erhält durch das Einsetzen von (1.11) in (1.8) und Vertauschung von Integration und Summation unter Berücksichtigung von (1.5)

$$\Phi_W(x, t) = \frac{1}{2l(\sqrt{2\pi\sigma_0})^{\frac{1}{2}}} \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{x'-x_0}{2\sigma_0}\right)^2 + \frac{i}{\hbar} m v_0 (x'-x_0)} \times \right. \\ \left. \times \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{i}{\hbar} [E_n t + p_n(x-x')]} dx' \right\} \quad (1.16)$$

2. Teilchendarstellung

Für eine beliebige Hamilton-Funktion H läßt sich die Lösung der Schrödinger-Gleichung (1.1) in Operatorform schreiben:

$$\Phi(x, t) = e^{-\frac{i}{\hbar} H t} \Phi(x, 0). \quad (2.1)$$

Für die spezielle Funktion $H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2}$ führt dies mit der Identität (Beweis s. Anhang)

$$e^{\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2}} f(x) = \frac{1}{2\alpha\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{x-x'}{2\alpha}\right)^2} f(x') dx' \quad (2.2)$$

zu der d'Alembertschen Integraldarstellung

$$\Phi_I(x, t) = \left(\frac{-im}{2\pi\hbar t} \right)^{\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{\frac{im}{2\hbar t} (x-x')^2} \Phi(x', 0) dx'. \quad (2.3)$$

Mit der Anfangsfunktion (1.7) erhält man

$$\Phi_I(x, t) = \left(\frac{-im}{2\pi\hbar t} \right)^{\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{\frac{im}{2\hbar t} (x-x')^2} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} g(x' + 2kl) dx'. \quad (2.4)$$

Für die durch (1.5) gegebene Funktion $g(x)$ ist das Integral elementar ausführbar und man erhält

$$\Phi_T(x, t) = A(t) \cdot \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{\xi(t) - 2kl}{2\sigma(t)}\right)^2 - i\varphi_k(x, t)} \quad (2.5)$$

mit

$$A(t) = \left(\frac{s(t)}{\sqrt{2\pi\sigma(t)}} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (2.6)$$

wo

$$\left. \begin{aligned} \sigma(t) &= \sqrt{\sigma_0^2 + \tau_0^2 t^2}; & s(t) &= \frac{\sigma_0 - i\tau_0 t}{\sigma(t)} \\ |s(t)|^2 &= 1 \end{aligned} \right\} \quad (2.7)$$

$$\xi(t) = x - x_0 - v_0 t, \quad (2.8)$$

$$\varphi_k(x, t) = \frac{1}{4\sigma_0\tau_0 t} \left[\frac{\sigma_0^2}{\sigma(t)^2} (\xi - 2kl)^2 - (x - x_0 - 2kl)^2 \right]. \quad (2.9)$$

Eine kleine Rechnung zeigt, daß die Phase (2.9) für $t \rightarrow 0$ in den anfänglichen Phasenfaktor $-\frac{mv_0}{\hbar}(x - x_0 - 2kl)$ übergeht.

Bildet man die Größe $P(x, t) = |\Psi_T(x, t)|^2$ nach (1.3) und (2.5), so erhält man die Wahrscheinlichkeitsdichte. Wie in der eingangs zitierten Arbeit (Fußnote 1, S. 106) gezeigt, besteht diese aus drei Anteilen:

$$P(x, t) = P_c(x, t) + P_i(x, t) + P_r(x, t). \quad (2.10)$$

Der erste Anteil

$$P_c(x, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma(t)}} \cdot \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \left\{ e^{-\frac{1}{2\sigma(t)^2}(2kl + x - x_0 - v_0 t)^2} + e^{-\frac{1}{2\sigma(t)^2}(2kl - x - x_0 - v_0 t)^2} \right\} \quad (2.11)$$

stellt die Ausbreitung der Wahrscheinlichkeitsdichte dar, wenn man diese nach der klassischen Mechanik für eine Anfangsverteilung mit den Breiten σ_0 und τ_0 berechnet; der zweite, $P_i(x, t)$ stellt die Interferenz der Wahrscheinlichkeitsdichten zwischen einfallenden und reflektierten de Broglie-Wellen an den Endpunkten dar; der dritte, $P_r(x, t)$, ist klein, solange $\sigma(t) \ll l$ ist und kann dann vernachlässigt werden. Im Grenzfalle $\hbar \rightarrow 0$ kann man σ_0 und τ_0 beide Null setzen; dann verschwindet der Interferenzeffekt und man erhält das in Fig. 1 dargestellte Bild der klassischen Bahn, konstruiert durch periodische Wiederholung zweier gegeneinander laufender unbegrenzter Bahnen. Auch im klassischen Grenzfall sind σ_0 und τ_0 tatsächlich immer endlich und man erhält dann das in Fig. 2 dargestellte Bild. Es zeigt, daß auch in diesem Falle die Koordinate mit der Zeit unbestimmt wird.

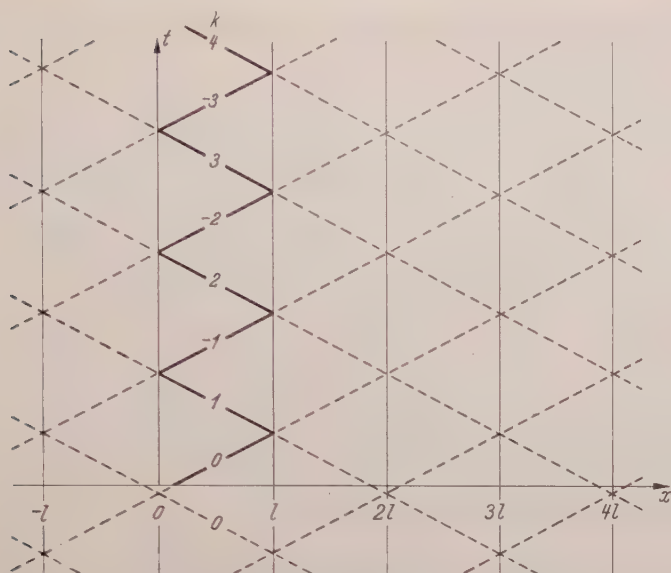


Fig. 1. Bahn $x(t)$ eines Teilchens in einem linearen Kasten der Länge l , konstruiert durch periodische Fortsetzung, wenn Anfangsort und -geschwindigkeit scharf sind

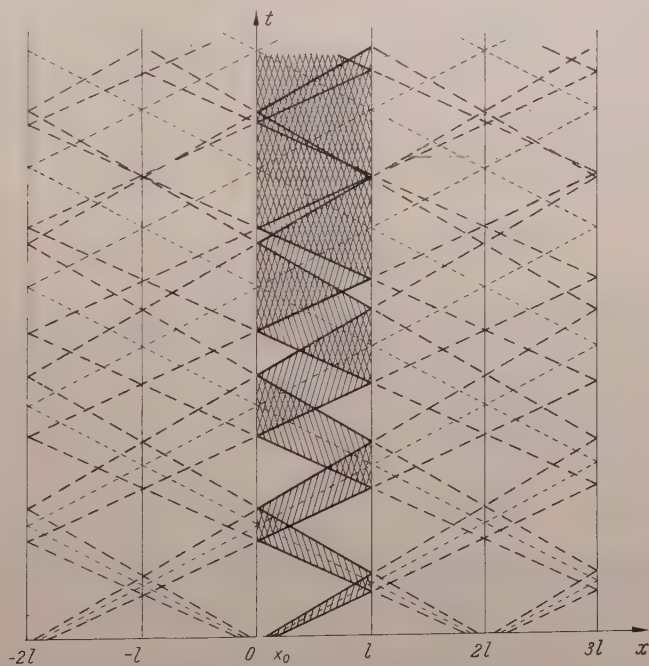


Fig. 2. Entspricht Fig. 1 für den Fall einer anfänglichen Ortsunschärfe σ_0 und Geschwindigkeitsunschärfe τ_0

Für das Folgende ist es angebracht, das Integral (2.4) auszuschreiben:

$$\Phi_T = \left(\frac{-im}{(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_0 \hbar t} \right)^{\frac{1}{2}} \times \left. \int_{-\infty}^{+\infty} e^{\frac{im}{2\hbar t} (x-x')^2} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{2kl+x'-x_0}{2\sigma_0} \right)^2 + \frac{i}{\hbar} m v_0 (2kl+x'-x_0)} dx' \right\} \quad (2.12)$$

Diese Teilchendarstellung läßt sich durch eine ϑ -Transformation leicht in die Wellendarstellung überführen. Dazu setzt man

$$\zeta = 2kl + x' - x_0; \quad \eta = \frac{ml}{\pi \hbar l} (x - x_0 - \zeta); \quad \tau = \frac{2ml^2}{\pi \hbar t}, \quad (2.13)$$

womit

$$\Phi_T = \left(\frac{-im}{(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_0 \hbar t} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{\zeta^2}{4\sigma_0^2} + \frac{imv_0}{\hbar} \zeta} \cdot \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{i\pi\tau \left(k + \frac{\eta}{\tau} \right)^2} d\zeta \quad (2.14)$$

wird. Nun gilt die Transformationsformel*

$$\sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{i\pi\tau \left(k + \frac{\eta}{\tau} \right)^2} = \sqrt{\frac{i}{\tau}} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{\frac{\pi}{i\tau} k^2 + \frac{2\pi\eta}{i\tau} k}, \quad (2.15)$$

mit der man aus (2.14) wieder unter Benutzung der Abkürzungen (2.13) genau die Wellendarstellung (1.16) erhält. Natürlich kann man die ϑ -Transformation ebenso gut auf die ausintegrierte Form (2.5) der Teilchendarstellung anwenden und erhält dann die Wellendarstellung in der Form [(1.12); (1.13)]. Da die Rechnung etwas umfangreich ist, soll hier nicht darauf eingegangen werden, zumal wir im nächsten Abschnitt die ϑ -Transformation nur in der obigen Weise benutzen.

3. Der Übergang von der Teilchendarstellung in die Wellendarstellung

Für kleine Zeiten ist die Darstellung (2.5) angemessen. Der Ort des Teilchens, der zur Zeit $t=0$ auf einen Bereich der Breite $\sigma_0 \ll l$ konzentriert war, verschmiert sich immer mehr [Breite $\sigma(t)$] und hat etwa zur Zeit $t=l/\tau_0$ die Breite l des Kastens erreicht. Dann kann man nicht mehr von Teilchen reden, die Wellen-Darstellung [(1.12); (1.13)] ist die angemessenere.

* Die auf der linken Seite von (2.15) auftretende Summe wird in der Theorie der elliptischen Funktionen mit $e^{\frac{i\pi\eta^2}{\tau}} \cdot \vartheta_3\left(\eta, \frac{\tau}{i}\right)$ bezeichnet; die Transformationsformel ist dann (siehe z.B. JAHNKE-EMDE, Funktionentafeln)

$$e^{\frac{i\pi\eta^2}{\tau}} \cdot \vartheta_3\left(\eta, \frac{\tau}{i}\right) = \sqrt{\frac{i}{\tau}} \cdot \vartheta_3\left(\frac{\eta}{\tau}, \frac{i}{\tau}\right).$$

Man hat also eine Darstellung zu suchen, die für kleine Zeiten in die Teilchendarstellung, für große Zeiten in die Wellendarstellung übergeht. Dazu kann man sich eines Verfahrens bedienen, das EWALD schon für andere Probleme benutzt hat. Es war in Abschnitt 2 gezeigt worden, daß durch eine ϑ -Transformation die Teilchen-Darstellung (2.5) in die Wellen-Darstellung (1.12), (113) übergeführt werden kann.

Man spaltet nun das Integral in (2.14) in folgender Weise auf:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \dots dx' = \left\{ \int_{-\infty}^{-\varepsilon} \dots dx' + \int_{\varepsilon}^{+\infty} \dots dx' \right\} + \int_{-\varepsilon}^{+\varepsilon} \dots dx'. \quad (3.1)$$

Hierbei soll die Grenze ε der Zeit proportional sein: $\varepsilon = u \cdot t$, wo u später noch näher festzulegen ist. Die ϑ -Transformation führt man nur in dem Integral $\int_{-ut}^{+ut} \dots dx'$ durch. Man sieht sofort: Für $t \rightarrow 0$ hat man reine Teilchen -, für $t \rightarrow \infty$ reine Wellendarstellung, für andere Zeiten ein Gemisch aus beiden.

Die etwas lange Rechnung soll hier nicht im einzelnen vorgeführt werden. Es ergibt sich für den „Teilchenanteil“

$$A(t) \cdot \sum_{k=-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{\xi(t)-2kl}{2\sigma(t)}\right)^2 - i\varphi_k(x,t)} \cdot K_k(ut). \quad (3.2)$$

mit

$$K_k(ut) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ G\left(\frac{\sqrt{\gamma}}{2\sigma_0} \left[ut + \frac{\xi(t)-2kl}{\beta(t)} \right] \right) + G\left(\frac{\sqrt{\gamma}}{2\sigma_0} \left[ut - \frac{\xi(t)-2kl}{\beta(t)} \right] \right) \right\}. \quad (3.3)$$

Hierin ist

$$\beta(t) = 1 + i \frac{\tau_0 t}{\sigma_0}; \quad \gamma(t) = 1 - i \frac{\sigma_0}{\tau_0 t} \quad (3.4)$$

und $G(x)$ die Gaußsche Fehlerfunktion, definiert durch

$$G(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \int_0^x e^{-x'^2} dx'; \quad G(-x) = -G(x); \quad G(\infty) = 1. \quad (3.5)$$

Ganz entsprechend ergibt sich für den „Wellenanteil“

$$A_0 \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{v_0 - kv_1}{2\tau_0}\right)^2 - i\chi_k(x,t)} \cdot M_k(ut) \quad (3.6)$$

mit

$$M_k(ut) = \frac{1}{2} \left\{ G\left(\frac{ut}{2\sigma_0} + i \frac{v_0 - kv_1}{2\tau_0}\right) + G\left(\frac{ut}{2\sigma_0} - i \frac{v_0 - kv_1}{2\tau_0}\right) \right\}. \quad (3.7)$$

Die gesamte Wellenfunktion $\Phi(x, t)$ ist die Summe von (3.2) und (3.6):

$$\Phi(x, t) = A(t) \cdot \sum_k e^{-\left(\frac{\xi(t) - 2kl}{2\sigma(t)}\right)^2 - i\varphi_k(x, t)} \cdot K_k(ut) + \left. \begin{aligned} &+ A_0 \cdot \sum_k e^{-\left(\frac{v_0 - kv_1}{2\tau_0}\right)^2 - i\chi_k(x, t)} \cdot M_k(ut) \end{aligned} \right\} \quad (3.8)$$

Diese Formel läßt sich mit Hilfe einiger Näherungen noch etwas vereinfachen, ohne daß dabei wesentliche Züge verlorengehen.

Im ersten Term von (3.8) liefern nur die Summanden einen wesentlichen Beitrag, für die $|\xi(t) - 2kl| < \sigma(t)$ ist. Deshalb können wir in (3.3) $\xi(t) - 2kl$ durch $\sigma(t)$ ersetzen; dann wird die Funktion $G(x)$ in (3.3) im einen Fall vergrößert, im andern verkleinert. Der Fehler ist sicher nicht allzu groß, zumal er durch die Summation der beiden Funktionen noch etwas reduziert wird. Es ist damit

$$K_k(ut) \rightarrow K(ut) = 1 - \frac{1}{2} \left\{ G\left(\frac{\sqrt{\gamma}}{2\sigma_0} \left[ut + \frac{\sigma(t)}{\beta(t)} \right] \right) + G\left(\frac{\sqrt{\gamma}}{2\sigma_0} \left[ut - \frac{\sigma(t)}{\beta(t)} \right] \right) \right\}, \quad (3.9)$$

unabhängig von k .

Ähnlich liegen die Verhältnisse beim Wellenanteil, dem zweiten Term in (3.8). Die Hauptbeiträge liefern die Summanden mit

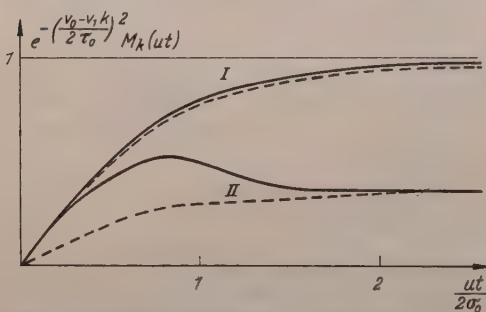


Fig. 3. Zeitlicher Verlauf des Amplitudenfaktors in der Wellendarstellung. Ausgezogen: richtiger Verlauf; gestrichelt: die benutzte Näherung. I: für $v_0 - kv_1 = 0$; II: für $|v_0 - kv_1| = 2\tau_0$

$|v_0 - kv_1| < \tau_0$. In Fig. 3 ist der Verlauf der Amplituden

$e^{-\left(\frac{v_0 - kv_1}{2\tau_0}\right)^2} \cdot M_k(ut)$ aufgetragen

[M_k ist reell, was aus (3.7) nicht unmittelbar ersichtlich ist!], und zwar

für $v_0 - kv_1 = 0$ (I) und

für $|v_0 - kv_1| = 2\tau_0$ (II).

Gestrichelt eingetragen ist der Verlauf für den Fall,

daß man $v_0 - kv_1/2\tau_0$ gegen

$ut/2\sigma_0$ vernachlässigt. Für

kleine t ergeben sich Ab-

weichungen; während in Wirklichkeit alle Amplituden zunächst gleich stark anwachsen, zeigt die Näherung ein verschieden starkes Anwachsen, das dem Verhältnis der Amplituden für große t entspricht. Da man sich jedoch nur für den allgemeinen Verlauf des Anwachsens interessiert, dürfte die Näherung gerechtfertigt sein, d.h.

$$M_k(ut) \rightarrow M(ut) = G\left(\frac{ut}{2\sigma_0}\right). \quad (3.10)$$

Mit diesen Annahmen erhält man letztlich unter Benutzung von (1.3)

$$\Psi(x, t) = K(ut) \cdot \Psi_T(x, t) + G\left(\frac{ut}{2\sigma_0}\right) \cdot \Psi_W(x, t). \quad (3.11)$$

Es ist noch die Größe u in vernünftiger Weise zu wählen. Man wird verlangen, daß für $t = t_c$, wo $\sigma(t)$ das ganze Intervall l überdeckt, die beiden Faktoren $K(ut_c)$ und $G\left(\frac{ut_c}{2\sigma_0}\right)$ etwa gleich groß sind (wobei $\sigma_0/\tau_0 t$ vernachlässigt ist), d.h. $G\left(\frac{ut_c}{2\sigma_0}\right)$ etwa gleich $1/2$ ist. Das ist der Fall für $ut_c/2\sigma_0 = 1/2$, und wenn man hier $t_c = l/\tau_0$ einsetzt, erhält man unter Berücksichtigung von (1.6) und (1.10):

$$u = \frac{\sigma_0 \tau_0}{l} = \frac{\hbar}{2ml} = \frac{v_1}{2\pi}. \quad (3.12)$$

Nach (1.13) bedeutet v_1 diejenige Anfangsgeschwindigkeit, für welche in der Wellendarstellung die Grundschiwingung $n = 1$ die stärkste Amplitude aller Teilschwingungen hat. Die Formel (3.12) zeigt, daß es für v_1 noch eine anschaulichere Bedeutung gibt: v_1 ist ein Maß dafür, wie schnell ein anfänglich scharf konzentriertes Wellenpaket auseinanderläuft. Da v_1 die einzige aus den inneren Eigenschaften des Systems ableitbare Geschwindigkeit ist, kann man auch umgekehrt argumentieren und als plausibel postulieren, daß u gleich einem kleinen Vielfachen von v_1 sein muß, etwa so, wie es die Formel (3.12) aussagt; dann folgt für den Zeitpunkt t_c des Übergangs von der Teilchen- zur Wellendarstellung [aus der Forderung, daß die Amplituden $K(ut_c)$ und $G(ut_c/2\sigma_0)$ gleich groß sind] wieder $t_c = l/\tau_0$.

Wie von vornherein zu erwarten, muß man um so eher die Teilchenvorstellung zugunsten der Wellenvorstellung aufgeben, je kleiner die Masse und die Kasten-dimension ist. In der Tabelle 1 sind die charakteristischen Geschwindigkeiten für einige Fälle zusammengestellt mit $l = 1$ cm. Danach braucht ein Eiweiß-Molekül, dem man die Geschwindigkeit v_1 gäbe, zur Zurücklegung der Strecke von 1 cm schon einige hundert Jahre, eine Masse von 1 g gar viele Weltalter.

Ist $\hbar = 0$, so findet nach (3.12) kein Auseinanderfließen statt; das setzt aber $\sigma_0 = 0$ oder $\tau_0 = 0$ voraus, eine Annahme, die auch klassisch nicht (oder kaum) realisierbar ist. Es wurde gezeigt³, daß auch klassisch ($\hbar = 0$) ein Zerfließen stattfindet, wenn nur $\tau_0 \neq 0$ ist. Es gibt dann auch eine Unschärferelation für gewisse konjugierte Größen, die aber kein \hbar enthält.

Tabelle 1

	v_1 in cm/sec
Elektron	3
Proton	$2 \cdot 10^{-3}$
Eiweiß-Molekül . .	$\sim 10^{-8}$
Masse 1 g	$3 \cdot 10^{-27}$

³ Siehe hierzu, neben der eingangs zitierten Arbeit von M. BORN, auch BORN, M., u. D. J. HOOTON: Z. Physik **142**, 201 (1955).

Die Gl. (3.9) soll noch etwas näher betrachtet werden. Zunächst schreiben wir die Entwicklung der Gl. (3.9) für die Grenzfälle großer und kleiner Zeiten auf, wobei wir drei Fälle unterscheiden müssen. Das geht aus Fig. 4 hervor, in der $\tau_0 t$ und ut in ihrer Beziehung zu σ_0 und l aufgetragen sind [nach (3.12) ist immer $u \ll \tau_0$]. Es ergibt sich:

$$K(ut) \approx \left\{ \begin{array}{ll} 1 - \frac{u \sqrt{t}}{\sqrt{\pi \sigma_0 \tau_0}} \cdot e^{-i \left(\frac{\pi}{4} - \frac{\sigma_0}{4 \tau_0 t} \right)} & ut \ll \sigma_0, \tau_0 t \ll \sigma_0 \quad (a) \\ 1 - \frac{ut}{\sqrt{\pi \sigma_0}} & ut \ll \sigma_0 \ll \tau_0 t \quad (b) \\ \frac{2 \sigma_0}{\sqrt{\pi} ut} \cdot e^{-\left(\frac{ut}{2 \sigma_0} \right)^2} & ut \gg \sigma_0, \tau_0 t \gg \sigma_0 \quad (c) \end{array} \right\} \quad (3.13)$$

Streichen wir dagegen in (3.9) $\sigma(t)/\beta(t)$ gegen ut und bilden die entsprechenden Entwicklungen, so unterscheiden sich diese nur in dem Phasenfaktor in (3.13a). Für das Abnehmen des „Teilchenanteils“ ist dieser Faktor nicht so sehr wichtig,

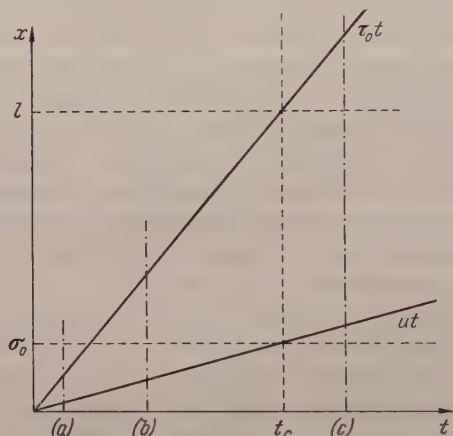


Fig. 4. Relative Lage von $\tau_0 t$ und ut zueinander im x, t -Diagramm

wohl aber, wenn wir quadratische Ausdrücke der Gesamtfunktion $\Phi(x, t)$ bilden, da es dann Interferenzen zwischen Teilchen- und Wellenanteil gibt, für die die Phase unter Umständen wichtig wird. Wenn wir ihn für unsere Betrachtungen streichen und das auf die allgemeine Beziehung (3.9) übertragen, so können wir $\sigma(t)/\beta(t)$ gegen ut vernachlässigen und erhalten damit einfach

$$K(ut) = 1 - G \left(\frac{ut}{2 \sigma_0} \sqrt{1 - i \frac{\sigma_0}{\tau_0 t}} \right). \quad (3.14)$$

Es ist hier nur die Amplitude $\Psi(x, t)$ untersucht worden. Die Diskussion der Wahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi(x, t)|^2$ ist viel komplizierter. Es tritt außer den Quadraten von Teilchen- und Wellenanteil ein Interferenzglied zwischen beiden auf, welches die Sache sehr unübersichtlich macht. Einfach sind nur die Grenzfälle sehr kleiner und großer Zeiten, für die das Interferenzglied keinen wesentlichen Beitrag liefert.

Es wäre vielleicht nicht ohne Interesse, das Übergangsgebiet numerisch für ein Beispiel exakt durchzurechnen, was mit Hilfe moderner Rechenmaschinen wohl nicht allzu mühsam wäre.

Anhang

Das Integral

$$I = \frac{1}{2\alpha\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\left(\frac{x-\xi}{2\alpha}\right)^2} f(\xi) d\xi \quad (\text{A.1})$$

geht durch die Substitution $\xi = x + 2\alpha\eta$ über in

$$I = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} f(x + 2\alpha\eta) e^{-\eta^2} d\eta.$$

Entwickelt man die Funktion $f(x + 2\alpha\eta)$ in eine Taylorsche Reihe, so erhält man

$$I = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(2\alpha)^n}{n!} J_n f^{(n)}(x), \quad (\text{A.2})$$

wo $f^{(n)}(x)$ die n -te Ableitung von $f(x)$ und

$$J_n = \int_{-\infty}^{\infty} \eta^n e^{-\eta^2} d\eta$$

ist. Dieses Integral verschwindet für ungerade n ; für gerade hat man

$$J_{2n} = \sqrt{\pi} \frac{(2n)!}{n! 2^{2n}}. \quad (\text{A.3})$$

Setzt man das in (A.2) ein, so erhält man

$$I = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^{2n}}{n!} f^{(2n)}(x) = \left[\exp\left(\alpha^2 \frac{d^2}{dx^2}\right) \right] f(x). \quad (\text{A.4})$$

Das ist die im Text benutzte Identität.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Technischen Hochschule Braunschweig

Invariante Flächen der Elektrodynamik

Von

MAX KOHLER

(Eingegangen am 8. Oktober 1957)

Gewisse Ergebnisse einer früheren Arbeit über invariante Flächen werden verallgemeinert. Beide Flächenscharen existieren nur dann, wenn die Bedingungen $M_{ik}^* P^k = 0$ im ganzen Felde erfüllt sind. Über die Metrik des Raumes ist dabei keine spezialisierende Voraussetzung notwendig. Die früheren Ergebnisse für den strom- und ladungsfreien Fall sind in der allgemeinen Formulierung enthalten. Der Rang der Matrix von M_{ik} ist dabei gleich 2 vorausgesetzt.

In einer vorangegangenen Arbeit¹ wurde gezeigt, daß jenen elektromagnetischen Feldern für die:

$$M_{12}M_{34} + M_{13}M_{42} + M_{14}M_{23} = 0 \quad (1)$$

ist, eine zweifach unendliche Schar 2-dimensionaler invarianter Flächen im vierdimensionalen Raum zugeordnet werden kann. Die Relation (1) ist bekanntlich die notwendige und hinreichende Bedingung dafür, daß sich der Sechservektor M_{ik} darstellen läßt als Vektorprodukt von zwei Vierervektoren². Durch die beiden Vierervektoren wird im betrachteten Weltpunkt ein infinitesimales 2-dimensionales Ebenenstück der Stellung nach definiert. Dieses Ebenenstück steht senkrecht zu der jeweiligen Fläche der erwähnten Schar. Ein Linienelement dx^k ($k = 1, 2, 3, 4$) einer derartigen Fläche erfüllt daher die Bedingungen:

$$M_{ik} dx^k = 0 \quad (i = 1, 2, 3, 4). \quad (2)$$

Dies sind vier homogene, lineare Gleichungen für die vier dx^k . Wenn die Bedingung (1) erfüllt ist, so ist der Rang der Matrix $||M_{ik}||$ gleich 2. Daher haben die Gln. (2) nichttriviale Lösungen. Infolge der vollständigen Integrierbarkeit der Gln. (2) liegen die Linienelemente in der durch den Weltpunkt gehenden Fläche der erwähnten Schar.

In der früheren Arbeit wurde im strom- und ladungsfreien Falle die Existenz einer 2. Flächenschar nachgewiesen, die orthogonal zur 1. Schar steht. Das Verschwinden der Viererstromdichte ist offenbar eine hinreichende aber keine notwendige Voraussetzung für die Existenz der

¹ KOHLER, M.: Z. Physik **148**, 443 (1957). In Zukunft mit I bezeichnet.

² Vgl. z.B. DUSCHEK, A., u. W. MAYER: Lehrbuch der Differentialgeometrie. Bd. II: Riemannsche Geometrie, S. 20ff. Leipzig u. Berlin 1930.

2. Schar. Im folgenden werden notwendige und hinreichende Bedingungen für das Vorhandensein der 2. Flächenschar aufgestellt. Dies geschieht ohne Beschränkung hinsichtlich der Metrik.

§ 1. Allgemeine Behandlung des strom- und ladungsfreien Falles

Wir bilden den zu M_{ik} dualen Sechservektor:

$$M_{ik}^* = \frac{1}{2!} \cdot g^{il} \cdot g^{mn} \varepsilon_{jmik} \cdot M_{ln}, \quad (3)$$

wo ε_{jmik} die Komponenten des vollständig antisymmetrischen ε -Tensors sind, der die Komponenten $+\sqrt{-g}$, $-\sqrt{-g}$ oder Null hat.

Wenn die Matrix des Sechservektors M_{ik} den Rang 2 hat, was wir immer voraussetzen wollen, so hat auch die Matrix $\|M_{ik}^*\|$ des dualen Sechservektors den Rang 2, wie man sofort erkennt, wenn man die Gln. (3) in einem geodätischen System mit den pseudoeuklidischen g^{ik} benutzt.

Wir betrachten nun das System von totalen Differentialgleichungen:

$$M_{ik}^* dx^k = 0 \quad (i = 1, 2, 3, 4). \quad (4)$$

Da der Rang der Matrix $\|M_{ik}^*\|$ gleich 2 ist, hat auch dieses Gleichungssystem für die Koordinatendifferentiale nichttriviale Lösungen. Wir wollen zeigen, daß es vollständig integrierbar ist, wenn die Viererstromdichte verschwindet.

Aus $D_h M_{ik}^* = 0$ ($i = 1, 2, 3, 4$ und D_h das Symbol für die kovariante Differentiation) folgt sofort:

$$\frac{\partial M_{ik}^*}{\partial x_l} + \frac{\partial M_{li}^*}{\partial x_k} + \frac{\partial M_{kl}^*}{\partial x_i} = 0 \quad (i, k, l = 1, 2, 3, 4).$$

Diese Gleichungen drücken aber die Bedingungen dafür aus, daß sich M_{ik}^* als Rotor eines Vierervektors darstellen läßt. Weil M_{ik}^* außerdem den Rang 2 hat, kann man M_{ik}^* nach den Ergebnissen der früheren Arbeit so darstellen:

$$M_{ik}^* = \frac{\partial \xi_2}{\partial x_i} \frac{\partial \eta_2}{\partial x_k} - \frac{\partial \xi_2}{\partial x_k} \frac{\partial \eta_2}{\partial x_i}.$$

Darin sind ξ_2 und η_2 Skalare. Nach früheren Ergebnissen ist daher das System (4) vollständig integrierbar und die 2. Flächenschar wird durch die Gleichungen $\xi_2 = \text{const}$ und $\eta_2 = \text{const}$ gegeben. Die Invarianz der Flächenschar folgt sofort aus dem invarianten Charakter der Gln. (4). Die Orthogonalität der aus (4) folgenden Flächenschar zu den Flächen der 1. Schar ergibt sich aus der Orthogonalität der infinitesimalen Ebenenstücke, die man den beiden Sechservektoren M_{ik} und M_{ik}^* zuordnen

kann. Jede Richtung in dem M_{ik} zugeordneten Ebenenstück steht senkrecht auf dem Ebenenstück, das M_{ik}^* entspricht. Dies folgt aus der Definitionsgleichung des dualen Sechservektors. Bei dieser Überlegung kann man die Rollen von M_{ik} und M_{ik}^* vertauschen.

§ 2. Die 2. Flächenschar in allgemeinen Fällen

Wenn die Viererstromdichte nicht verschwindet, so kann die 2. Flächenschar auch noch existieren. Wir wollen die notwendigen und hinreichenden Bedingungen dafür finden. Es sei:

$$M_{ik} = \frac{\partial \xi_1}{\partial x_i} \frac{\partial \eta_1}{\partial x_k} - \frac{\partial \xi_1}{\partial x_k} \frac{\partial \eta_1}{\partial x_i}. \quad (5)$$

Dann ist die Viererstromdichte gegeben durch:

$$\frac{4\pi}{c} P^i = D_k M^{ik} \quad (i = 1, 2, 3, 4). \quad (6)$$

Nun betrachten wir das folgende System von homogenen, linearen partiellen Differentialgleichungen:

$$X_1 f = p^i \frac{\partial f}{\partial x_i} = 0, \quad (7a)$$

$$X_2 f = q^i \frac{\partial f}{\partial x_i} = 0 \quad (7b)$$

mit:

$$p^i = g^{ij} \frac{\partial \xi_1}{\partial x_j}, \quad q^i = g^{ij} \frac{\partial \eta_1}{\partial x_j}. \quad (7c)$$

Die Normalenrichtung der Hyperflächen $f = \text{const}$, wo f eine Lösung der Gln. (7a) und (7b) ist, steht senkrecht auf den Richtungen der beiden Vierervektoren p^i und q^i . Letztere stehen aber als Gradientenvektoren senkrecht zu den Hyperflächen $\xi_1 = \text{const}$ und $\eta_1 = \text{const}$, damit also senkrecht zu der durch den betrachteten Welpunkt gehenden Fläche der 1. Schar. Die Tangentenrichtungen von $f = \text{const}$ enthalten also das Ebenenstück, das M_{ik} entspricht. Die infinitesimalen Ebenenstücke von M_{ik} fügen sich zu 2-dimensionalen Flächen zusammen (sie sind tangential zu diesen), wenn das Differentialgleichungssystem (7a) und (7b) vollständig integrierbar ist. Dann und nur dann hat nämlich dieses System 2 unabhängige Lösungen, f_1 und f_2 , die Konstanten gleichgesetzt die Gleichungen der 2. Flächenschar ergeben. Unabhängige Lösungen heißt: Jede weitere Lösung der Gln. (7a) und (7b) läßt sich als Funktion von f_1 und f_2 darstellen.

Das Gleichungssystem (7a) und (7b) ist vollständig, wenn:

$$X_1 X_2 - X_2 X_1 = a X_1 + b X_2, \quad (8)$$

wo a und b irgendwelche Funktionen der Koordinaten sind. Nun ist:

$$X_1 X_2 - X_2 X_1 = \left(p^i \frac{\partial q^i}{\partial x_j} - q^i \frac{\partial p^i}{\partial x_j} \right) \frac{\partial}{\partial x_i}.$$

Die Gln. (8) sind erfüllt, wenn:

$$p^j \frac{\partial q^i}{\partial x_j} - q^j \frac{\partial p^i}{\partial x_j} = a p^i + b q^i. \quad (9)$$

Weiter ist:

$$M^{ik} = p^i q^k - q^i p^k. \quad (10)$$

Daher:

$$\frac{4\pi}{c} P^i = p^i D_k q^k + q^k D_k p^i - p^k D_k q^i - q^i D_k p^k. \quad (11)$$

Die Gln. (9) lassen sich nun in kovarianter Form schreiben, wie man am besten durch direktes Ausrechnen zeigt:

$$p^k D_k q^i - q^k D_k p^i = a p^i + b q^i \quad (i = 1, 2, 3, 4). \quad (9a)$$

Wenn diese Gleichungen erfüllt sind, so existiert die 2. Flächenschar. Es wird dann aus (11):

$$\frac{4\pi}{c} P^i = (\square \eta_1 - a) p^i - (b + \square \xi_1) q^i. \quad (12)$$

Da die Vektoren p^i und q^i Normalen der Fläche $\xi_1 = \text{const}$ und $\eta_1 = \text{const}$ sind, steht also auch die Viererstromdichte P^i senkrecht zu den Flächen der 1. Schar. Es bestehen damit die Beziehungen:

$$M_{ik}^* P^k = 0 \quad (i = 1, 2, 3, 4). \quad (13)$$

Diese Beziehungen wurden gewonnen unter der Annahme der Existenz der 2. Flächenschar. Man kann diese Schlußweise aber auch umkehren. Geht man von (13) aus, so folgen sofort die Vollständigkeitsbedingungen (9a). Die Gln. (13) sind notwendig und hinreichend für die Existenz der 2. Schar. Sie sind erfüllt für $P^i = 0$. Wir kommen dann zum Spezialfall des §1.

§ 3. Diskussion und spezielle Fälle

Die infinitesimalen Ebenenstücke des Sechservektors M_{ik} sind tangential zu den Flächen der 2. Schar. Man kann sie daher auch kurz als M -Flächen bezeichnen. Entsprechend sind die Ebenenstücke des Sechservektors M_{ik}^* tangential zu den Flächen der 1. Schar (M^* -Flächen). Letztere Flächen existieren immer.

Wir setzen nun pseudoeuklidische Metrik voraus.

Im elektrostatischen Felde (im Ruhssystem des Feldes) kann man setzen:

$$\xi_1 = x^4, \quad \eta_1 = \varphi(x_1, x_2, x_3).$$

Die Viererstromdichte ist ein Vierervektor parallel zur x^4 -Achse und steht daher immer senkrecht zu dem Ebenenstück des Sechservektors M_{ik}^* , das durch zwei raumartige Vierervektoren aufgespannt wird. Daher existieren beide Flächenscharen in allen Fällen. In I war die Existenz der 2. Flächenschar nur im ladungsfreien Falle ausgesprochen worden.

Im Falle des stationären Magnetfeldes sind ξ_1 und η_1 beide Funktionen der räumlichen Koordinaten. Die Flächen der 1. Schar sind in I diskutiert. Die 2. Schar existiert nach (13) nur, wenn:

$$\mathfrak{S} \cdot \mathfrak{B} = 0,$$

d.h., wenn die räumliche Stromdichte auf dem magnetischen Feldvektor senkrecht steht oder wenn erstere verschwindet. Das ist die vom Dreidimensionalen her bekannte Bedingung für den flächennormalen Charakter der magnetischen Feldlinien. Die Bedingungen (13) können daher als eine vierdimensionale Verallgemeinerung jener dreidimensionalen Gleichung angesehen werden, wobei allerdings wesentlich allgemeinere Feldtypen in der vierdimensionalen Fassung enthalten sind.

Berichtigung

zu der Arbeit DIETRICH HAHN und F.-W. SEEMANN, Die Bedeutung von Randschichten und Polarisationsfeldern für die Elektrolumineszenz. Diese Zeitschrift Bd. 149, S. 486—503 (1957).

Auf S. 495 ist bei der Fig. 6 das obere Bildpaar a/b mit dem unteren c/d vertauscht worden. Die Erklärungen a -40° C und b $+20^\circ$ C gehören zu den unteren Bildern, während c $+100^\circ$ C und d $+125^\circ$ C für die oberen Bilder gültig ist.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Gießen

Zur Frage der Energieübertragung in festen Polyacenlösungen

Von

A. SCHMILLEN

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 15. Oktober 1957)

Die spektrale Verteilung und das Abklingen der Fluoreszenz einiger fester Polyacenlösungen, die eine oder zwei Fremdkomponenten in verschiedenen Konzentrationen enthalten, wird diskutiert. Die Energieübertragung vom Grundgitter zu den Fremdmolekülen beruht nach den Beobachtungen auf einem Excitoneneinfang, die Übertragung zwischen zwei verschiedenen Fremdkomponenten auf Dipol-Dipol-Wechselwirkung der beiden Fremdkomponenten. Für die mittlere Diffusionslänge des Excitons im Chrysen ergibt sich aus den Messungen ein Wert von etwa 55 Molekülabständen.

Die heute allgemein bekannte starke Wirkung geeigneter Verunreinigungen auf die Fluoreszenz organischer Kristalle wird durch die Übertragung der Anregungsenergie vom Grundgitter auf die Fremdmoleküle erklärt. Die Frage nach dem Mechanismus der Energieübertragung wird in zahlreichen Veröffentlichungen der letzten Jahre diskutiert [1].

Sehr wesentlich sind in diesem Zusammenhang die spektroskopischen Untersuchungen von CRAIG und HOBBS [2] und SIDMAN [3] am Anthracen, von McCURE und SCHNEPP [4] und von CHR. WOLF [5] am Naphthalin und von McCURE [6] am Phenanthren, die eine Abhängigkeit der spektralen Lage der langwelligsten Absorption dieser Kristalle von der Polarisationsrichtung des eingestrahnten Lichtes relativ zu den Kristallachsen aufzeigten. Dieser Dichroismus wird als Wechselwirkungseffekt zwischen den Molekülen auf Grund der Dipolmomente des Absorptionsübergangs angesprochen. Die Molekülwechselwirkung führt zur Ausbildung des Excitonbandes, das in den obigen Fällen wegen der Symmetrie der Elementarzelle in zwei Bänder aufspaltet (Davydov splitting), und das dadurch spektroskopisch unmittelbar feststellbar wird. Vorstellungen, die die Energieübertragung in den organischen Kristallen auf „Excitonwanderung“ zurückführen, gewinnen dadurch sehr an Gewicht.

Untersuchungen der Fluoreszenzabklingvorgänge sind für die Beantwortung dieser Fragestellung sehr von Nutzen. In Fortführung

früherer Arbeiten [7] werden im folgenden die Ergebnisse weiterer derartiger Untersuchungen an polykristallinen festen Lösungen mitgeteilt und diskutiert.

Experimentelle Durchführung

Fluoreszenzspektren und Abklingzeiten bei Anregung mit Licht der Wellenlängen 3131 und 3660 bzw. 4365 Å wurden an den in Tabelle 1 aufgeführten festen Lösungen untersucht.

Tabelle 1

Fremdmoleküle		Grundgitter	Molverhältnis
I	Anthrazen	Naphthalin	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Chrysen	Naphthalin	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Tetracen	Naphthalin	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Tetracen	Chrysen	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Tetracen	Anthrazen	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Anthrazen	Fluoren	$(10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
II	Tetracen + Anthrazen	Naphthalin	$3 \cdot 10^{-5} : (10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$
	Tetracen + Chrysen	Naphthalin	$3 \cdot 10^{-5} : (10^{-5} \text{ bis } 10^{-2}) : 1$

Die als Grundmaterial benutzten Substanzen waren sorgfältigst gereinigt, Anthrazen, Chrysen und Fluoren chromatographisch über Al_2O_3 , Naphthalin durch Zonenschmelzverfahren. Die gereinigten Substanzen zeigten neben der Fluoreszenz des Grundgitters keinerlei längerwellige Emission mehr, so daß mit Sicherheit der molare Anteil längerwellig emittierender Verunreinigungen unter 10^{-6} lag.

Den gereinigten Ausgangssubstanzen wurden die Verunreinigungen in geeigneter Verdünnung zugesetzt, im Reagenzglas im Ölbad zusammengeschmolzen und über eine kalte Glasplatte ausgegossen, um eine Entmischung beim Erstarren weitgehend zu verhindern*. Die erstarrte Substanz wurde zu feinem Pulver verrieben und zur Messung in eine kreisförmige Vertiefung eines metallischen Präparateträgers eingedrückt (Schichtdicke 2 mm).

Die Spektren wurden bei Zimmertemperatur mit einem registrierenden Doppelmonochromator aufgenommen. In den Fig. 1—3 sind die unkorrigierten Photostromkurven als Funktion der Wellenzahl wiedergegeben. Die spektrale Verteilung des Multipliers (Fernseh GmbH. FS 9-A), die Absorption des Monochromators und die veränderliche Breite des Dispersionsgebietes sind nicht berücksichtigt, da es im folgenden nur auf die relativen Änderungen im Spektrum ankommt. Die Abklingvorgänge wurden mit einem früher [7] beschriebenen, inzwischen weiter entwickelten Phasenfluorometer gemessen. Durch geeignete Filter konnten die Emissionsbanden der Grundsubstanz und der länger-

* Nach WRIGHT [8] baut ein Naphthalinkristall, der langsam aus der Schmelze gezogen wird, nicht mehr als 0,001% Anthrazen ein.

wellig fluoreszierenden Fremdmoleküle getrennt erfaßt werden. Zwischen dem im Phasenfluorometer gemessenen Phasenwinkel φ , der Oszillationsfrequenz der Anregungsintensität ν und der Abklingdauer der Fluoreszenz τ besteht unter der Voraussetzung exponentiellen Abklingens die Beziehung $\operatorname{tg} \varphi = 2\pi\nu\tau$. Da das exponentielle Abklingen hier nicht mehr in allen Fällen vorausgesetzt werden kann, weil mehrstufige Übergangsprozesse zu erwarten sind, ist in den Diagrammen nur der Phasenwinkel φ selbst als Maß für die Abklingdauer aufgetragen. Bei der benutzten Oszillationsfrequenz von 10 MHz entspricht einem Phasenwinkel von 25° eine Abklingzeit von $6,8 \cdot 10^{-9}$ sec, von 50° $1,8 \cdot 10^{-8}$ sec und von 75° $5,53 \cdot 10^{-8}$ sec. Einstrahlung und Austritt der Fluoreszenzstrahlung erfolgten sowohl bei der Aufnahme der Spektren wie bei der Abklingzeitmessung von der gleichen Seite des Präparates.

Bemerkungen zu den Spektren

An den Fluoreszenzspektren der untersuchten festen Lösungen, von denen nur vier charakteristische Fälle hier wiedergegeben seien, ist folgendes bemerkenswert:

a) Bei den Lösungen I mit einer Fremdkomponente nimmt die kurzwellige Grundgitteremission mit wachsender Fremdmolekülkonzentration

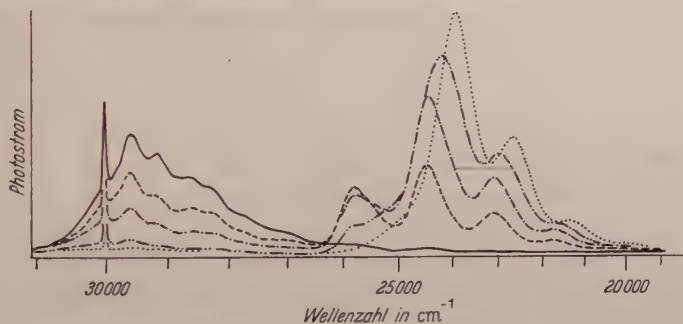


Fig. 1. Fluoreszenzspektren von Anthrazen und Naphthalin bei Anregung mit 3131 Å ($31\,930\text{ cm}^{-1}$). — Naphthalin rein; --- Naphthalin + 10^{-8} Anthrazen; - - - Naphthalin + 10^{-4} Anthrazen; - · - · - Naphthalin + 10^{-6} Anthrazen; · · · · · Naphthalin + 10^{-2} Anthrazen

tion zugunsten der langwelligeren Fremdmolekülfluoreszenz ab (Fig. 1). Das ist seit langem bekannt. Dabei ändert sich die spektrale Struktur der Grundgitteremission nicht. Bereits daraus folgt, daß die Fremdmoleküle ihre Anregungsenergie nicht durch Absorption der Grundgitterfluoreszenz erhalten, sonst müßten die Absorptionsbanden des Fremdmoleküls im Emissionsbandensystem des Grundgitters erkennbar werden.

b) Die spektrale Struktur der Fremdmolekülfluoreszenz ändert sich mit der Konzentration. Nach höheren Konzentrationen hin nimmt die Intensität des kurzwelligsten Maximums stark ab (Fig. 1). Dieser Effekt

beruht auf einer Selbstabsorption der eigenen Fluoreszenzstrahlung, der bekanntlich dazu führt, daß z. B. beim reinen Anthrazen das vollständige Fluoreszenzspektrum nur bei extrem dünnen Schichten beobachtet

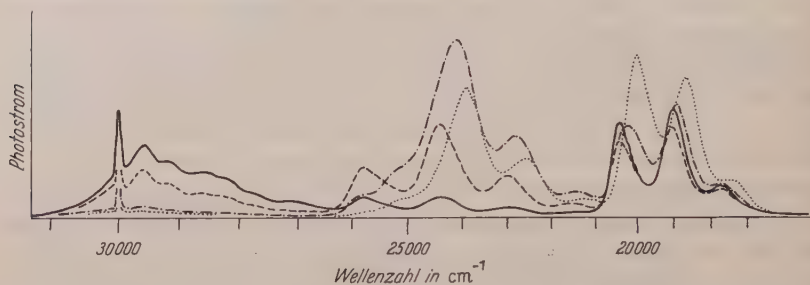


Fig. 2a. Fluoreszenzspektren von Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + Anthrazen bei Anregung mit 3131 Å (31930 cm^{-1}). — Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-5} Anthrazen; --- Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-4} Anthrazen; - · - · - Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-3} Anthrazen; · · · · · Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-2} Anthrazen

werden kann, bei dickeren Schichten aber der kurzwellige Teil der Emission fehlt [9].

Ferner beobachtet man bei Konzentrationen oberhalb eines Molverhältnisses von 10^{-4} Änderungen in der Struktur der langwelligeren Banden der Fremdmolekülfluoreszenz, beim Anthrazen in Naphthalin

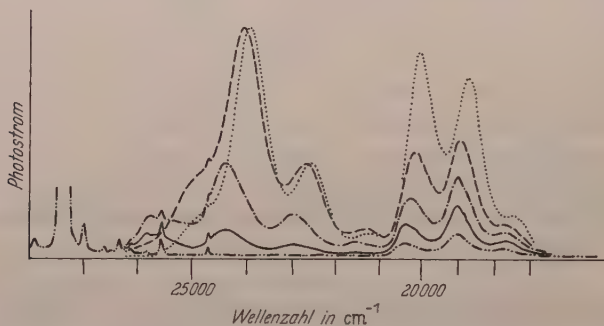


Fig. 2b. Fluoreszenzspektren von Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + Anthrazen bei Anregung mit 3660 Å (27320 cm^{-1}). - · - · - Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen; — Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-5} Anthrazen; - · - · - Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-4} Anthrazen; --- Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-3} Anthrazen; · · · · · Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-2} Anthrazen

z. B. eine Verschiebung der Maxima nach längeren Wellen um etwa 800 cm^{-1} und eine Änderung der relativen Intensitäten (Fig. 1 und 2a, b), beim Chrysen in Naphthalin Änderungen in der feineren Struktur der Maxima mit Hervortreten kurzwelligerer Spitzen (Fig. 3), wie man sie beim Spektrum des reinen kristallinen Chrysens vorfindet. Diese Änderungen sind darauf zurückzuführen, daß neben der festen Lösung des Fremdmoleküls im Grundgitter (A in B) die Fremdschicht (A)

kristallin ausfällt, das Spektrum also eine Superposition der Fluoreszenz von (*A* in *B*) und (*A*) ist. Dafür spricht auch, daß die langwellige Verschiebung beim Anthrazen in Naphthalin in vergleichbaren Konzentrationsverhältnissen bei Anregung mit 3660 \AA stärker ausgeprägt ist als bei Anregung mit 3131 \AA . In letzterem Falle wird bevorzugt die Phase (*A* in *B*) angeregt.

Ganz ähnlich liegen die Verhältnisse auch bei den hier nicht wiedergegebenen Spektren von Anthrazen in Fluoren. Das Spektrum des

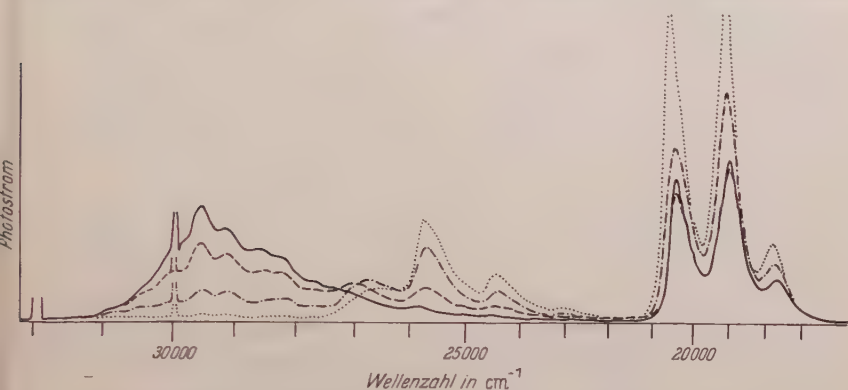


Fig. 3. Fluoreszenzspektren von Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + Chrysen bei Anregung mit 3131 \AA (31930 cm^{-1}). — Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-8} Chrysen; --- Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-6} Chrysen; - · - · - Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-4} Chrysen; · · · · · Naphthalin + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen + 10^{-2} Chrysen

reinen Fluorens ist meines Wissens in der Literatur noch nicht richtig angegeben. In einer Arbeit von R.C. SANGSTER und IRVINE [10] ist für die Fluoreszenzemission des reinen kristallinen Fluorens ein Bandensystem zwischen 4000 und 5000 \AA wiedergegeben. Das Fluoreszenzspektrum des von uns gereinigten Fluorens ist dagegen bis auf geringe Unterschiede in der feineren Struktur mit dem Fluoreszenzspektrum des Naphthalins identisch. Das steht in Einklang mit dem bekannten Absorptionsspektrum des gelösten Fluorens, das ebenfalls dem Absorptionsspektrum des Naphthalins sehr verwandt ist. Die von SANGSTER und IRVINE dem Fluoren zugeschriebene Emission dürfte von einer Verunreinigung (wahrscheinlich Anthrazen) herrühren.

c) Die Energieübertragung wird besonders eklatant bei den beiden Systemen II

Anthrazen + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen in Naphthalin

Chrysen + $3 \cdot 10^{-5}$ Tetracen in Naphthalin

mit konstanter Tetracenkonzentration und variabler Anthrazen- bzw. Chrysenkonzentration. Strahlt man mit Licht der Wellenlänge 3660 \AA ein, so werden nur die beiden Fremdpartner, nicht aber das Grundgitter

angeregt. Trotz unveränderten Tetracengehalts steigt die Intensität der Tetracenbanden mit wachsendem Gehalt der zweiten Fremdkomponente — beispielsweise Anthrazen — stark an, während die Anthrazenintensität geringer ist als bei Fehlen des Tetracens Fig. 6. Es ist unmittelbar ersichtlich, daß die vom Anthrazen (bzw. Chrysen) absorbierte Energie teilweise an das Tetracen abgegeben wird. Auch in diesem Falle ist keine Änderung der Bandenstruktur der Anthrazen- bzw. Chrysenemission durch eine eventuelle Tetracenabsorption feststellbar. Die Spektren vergleichbarer Lösungen mit und ohne Tetracen unterscheiden sich nur durch die geringere Intensität der Anthrazenemission, wenn Tetracen eingebaut ist. Bei höheren Anthrazenkonzentrationen ändert sich aber die Bandenlage oder die Struktur der Tetracenbanden. Offenbar wird bei der Auskristallisation des Anthrazen (bzw. Chrysen) das Tetracen teilweise in der auskristallisierten Phase eingebaut.

Weniger evident ist die Übertragung vom Anthrazen (bzw. Chrysen) zum Tetracen bei Anregung des Grundgitters mit 3131 \AA . Die Tetracenfluoreszenz nimmt unter diesen Umständen bei geringen Anthrazen- oder Chrysengehalten bis herauf zu 10^{-4} molar nicht wesentlich zu, zum Teil sogar etwas ab. Daß trotzdem eine Übertragung vom Anthrazen zum Tetracen vorliegt, ergibt sich aus folgendem. Aus den Abklingkurven (s. unten) folgt, daß die Tetracenemission in erster Linie vom angeregten Naphthalin gespeist wird. Mit wachsendem Anthrazen- oder Chrysengehalt nimmt die Naphthalinfluoreszenz stark ab. Es sollte daher auch die Tetracenintensität parallel zur Naphthalinfluoreszenz absinken. Das ist nicht in dem zu erwartenden Maße der Fall. Die Intensität bleibt fast konstant und nimmt bei höheren Anthrazengehalten zu, weil der größte Teil der vom Anthrazen übernommenen Energie ans Tetracen weitergegeben wird.

Das Abklingverhalten

Die Phasenverschiebung als Maß für die Abklingdauer bzw. für die Verzögerung der Fluoreszenzemission zeigt das folgende charakteristische Verhalten bei den untersuchten Lösungen I mit einer Fremdkomponente.

a) Die Abklingzeit der Grundgitterfluoreszenz wird kürzer mit zunehmender Konzentration der Verunreinigung (Fig. 4—7), d.h. es tritt in Konkurrenz zur Fluoreszenzemission ein anderer Übergangsprozeß, der die Besetzungsdichte des angeregten Zustandes reduziert. Quantitativ ergeben sich in den verschiedenen Lösungen für die Wahrscheinlichkeit dieses Konkurrenzprozesses beträchtliche Unterschiede. Beim Anthrazen in Naphthalin fällt die Lebensdauer der Naphthalinemission vom Wert der reinen Substanz ($\tau = 5,2 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$) schon bei einem

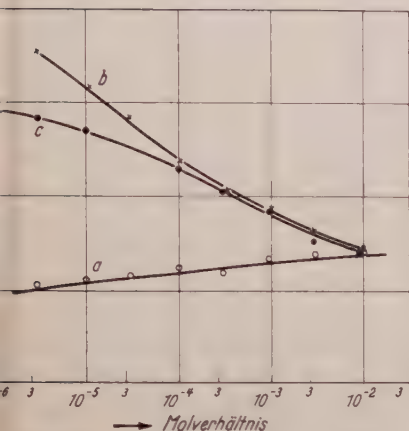


Fig. 4

Fig. 4. Phasenverschiebung der Fluoreszenz von Anthrazen in Naphthalin als Funktion der Anthrazenkonzentration. *a* Anthrazenemission bei Anregung mit 3600 Å; *b* Anthrazenemission bei Anregung mit 3131 Å; *c* Naphthalinemission bei Anregung mit 3131 Å

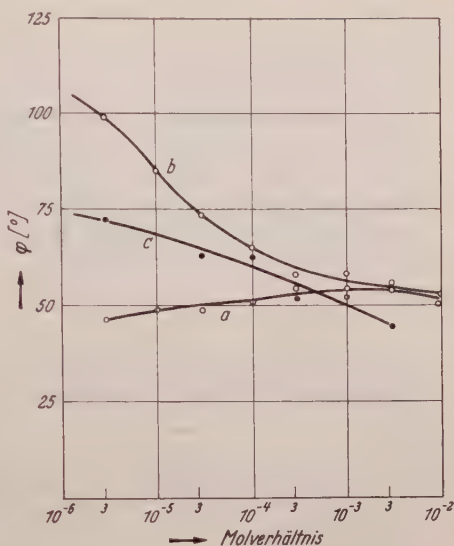


Fig. 5

Fig. 5. Phasenverschiebung der Fluoreszenz von Tetracen in Naphthalin als Funktion der Tetracenkonzentration. *a* Tetracenemission bei Anregung mit 3660 Å; *b* Tetracenemission bei Anregung mit 3131 Å; *c* Naphthalinemission bei Anregung mit 3131 Å

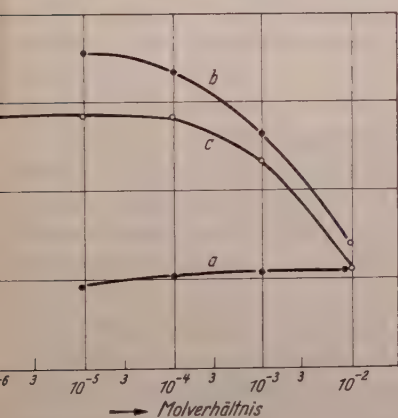


Fig. 6

Fig. 6. Phasenverschiebung der Fluoreszenz von Anthrazen in Fluoren als Funktion der Anthrazenkonzentration. *a* Anthrazenemission bei Anregung mit 3660 Å; *b* Anthrazenemission bei Anregung mit 3131 Å; *c* Fluorenenmission bei Anregung mit 3131 Å

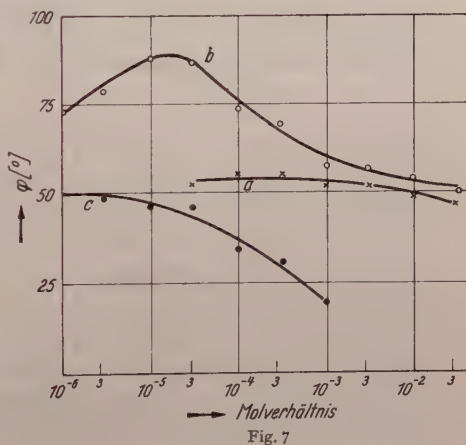


Fig. 7

Fig. 7. Phasenverschiebung der Fluoreszenz von Tetracen in Chrysen als Funktion der Tetracenkonzentration. *a* Tetracenemission bei Anregung mit 4360 Å; *b* Tetracenemission bei Anregung mit 3131 Å; *c* Chrysenemission bei Anregung mit 3131 Å

Anthrazenzusatz von 10^{-4} molar deutlich auf $4,0 \cdot 10^{-9}$ sec ab, während das Anthrazen im Fluoren erst oberhalb 10^{-4} die Lebensdauer der Fluorenfluoreszenz merklich reduziert (Fig. 6).

b) Die Abklingdauer der Fremdmolekülemission hängt stark von der anregenden Wellenlänge ab. Strahlt man in das Grundgitter ein (Wellenlänge 3131 Å), so erhält man in allen Fällen für die Lebensdauer der Fremdmolekülfluoreszenz einen wesentlich höheren Wert als bei Einstrahlung in die Absorptionsbande des Fremdmoleküls (3660 Å), also bei direkter Anregung desselben.

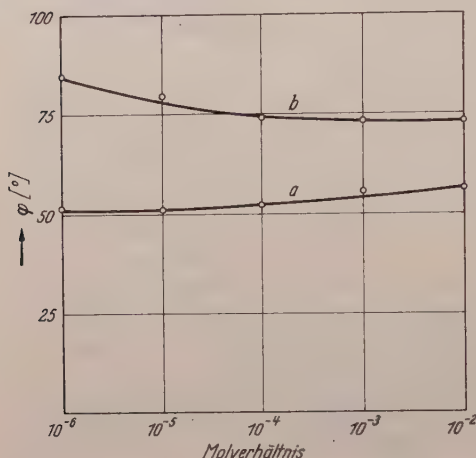


Fig. 8. Phasenverschiebung bei der Fluoreszenz von Tetracen + Anthrazen in Naphthalin in Abhängigkeit der Anthrazenkonzentration. *a* Tetracenemission bei Anregung mit 3660 Å; *b* Tetracenemission bei Anregung mit 3131 Å

Die Unterschiede werden besonders groß bei geringen Fremdkonzentrationen unter 10^{-4} . In dieser Verzögerung der Fremdmolekülemission bei Einstrahlung in das Grundgitter kommt eindeutig die Energieübertragung zum Ausdruck. Bei höheren Fremdkonzentrationen nimmt offensichtlich die Wahrscheinlichkeit der Energieübertragung zu. Die Auskristallisation bei höheren Konzentrationen macht jedoch die Verhältnisse sehr undurchsichtig. Die folgenden Überlegungen beschränken sich daher auf den Konzentrationsbereich unter $3 \cdot 10^{-4}$ molar.

Besonders ausgeprägt ist die Emissionsverzögerung bei der Lösung Tetracen in Chrysen (Fig. 7). (Die scheinbare Abnahme des Phasenwinkels der Tetracenemission unterhalb 10^{-5} molar ist noch nicht geklärt. Sie beruht vielleicht auf einem mit abnehmender Tetracenemission wachsenden Einfluß der langwelligen Ausläufer der schneller abklingenden Chrysenemission.)

Die beiden Mischsysteme mit einer zweiten Fremdkomponente konstanter Konzentration lassen auch in den Abklingdauern die Wechselwirkung der beiden Fremdkomponenten untereinander und mit dem Grundgitter erkennen (Fig. 8). Die Phasenverschiebung der Tetracene-fluoreszenz entspricht bei Anregung mit der Wellenlänge 3660 Å derjenigen des direkt angeregten Tetracen. Bei Anregung mit 3131 Å ist sie dagegen erheblich länger und nähert sich den Werten, die man bei den Systemen Tetracen in Naphthalin (ohne Chrysen oder Anthrazen) für die entsprechende Konzentration erhält.

Diskussion

Die in den vorangehenden Abschnitten hervorgehobenen Tatsachen lassen eine Energieübertragung vom Grundgitter zu den eingebauten Fremdmolekülen bis zu Konzentrationen von 10^{-5} molar herunter erkennen. Das sicherste Kriterium dafür ist die Emissionsverzögerung der Fremdmolekülfluoreszenz bei Einstrahlung in das Grundgitterabsorptionsgebiet (3431 Å). Drei Argumente sprechen dafür, daß diese Übertragung ein Konkurrenzprozeß zur Grundgitteremission ist und nicht durch Absorption der Grundgitterfluoreszenzstrahlung durch die Fremdmoleküle zustande kommt, nämlich

- a) die Abnahme der Lebensdauer der Grundgitterfluoreszenz,
- b) das Fehlen von Absorptionsbanden der Fremdschubstanz im Emissionsspektrum des Grundgitters,
- c) die verschiedene Wirksamkeit des Übertragungsprozesses in Naphthalin und Fluoren, die beide praktisch gleiches Emissionsspektrum haben. Die Absorption der Grundgitterfluoreszenz durch die Fremdmoleküle wird quantitativ bestimmt durch die Oszillatorenstärken beider Übergänge und durch den Überdeckungsgrad der beiden Spektren (Grundgitteremission und Fremdmolekülabsorption). Der Überdeckungsgrad ist in den beiden Lösungen Anthrazen in Naphthalin und Anthrazen in Fluoren gleich. Aus den Intensitätsverhältnissen der Naphthalin- und der Fluorenfluoreszenz, und aus den bekannten Verhältnissen der Absorptionskoeffizienten beider Substanzen in Lösungen ist zu entnehmen, daß Fluoren eine merklich größere Oszillatorenstärke hat als Naphthalin. Im Falle einer Energieübertragung durch Fluoreszenzabsorption würde man daher die stärkere Energieübertragung beim Fluoren erwarten entgegen dem tatsächlichen Befunde.

Es liegt nahe, die Nichtlokalisierbarkeit des Anregungszustandes infolge der Molekülwechselwirkung, d.h. das Exciton, für die Energiefortleitung vom Grundgitter zum Fremdmolekül verantwortlich zu machen. Im Falle schwacher Molekülwechselwirkung behandelt man den Vorgang am besten als Diffusionsprozeß des Elektronen-Lochpaares. Unter der Annahme, daß die Diffusion von Molekül zu Molekül mit der mittleren freien Weglänge des Molekülabstandes erfolgt, läßt sich dann die Abhängigkeit der Lebensdauer des Excitons von der Fremdkonzentration aus der Wahrscheinlichkeit der Begegnung mit einem Fremdmolekül herleiten. Benutzt man die folgenden Bezeichnungen:

- | | |
|----------------------------|--|
| τ_0 | mittlere Lebensdauer des ungestörten Excitons, |
| z_0 | mittlere Zahl der Diffusionsschritte des ungestörten Excitons, |
| $t_0 = \frac{\tau_0}{z_0}$ | mittlere Zeitdauer für einen Diffusionsschritt, |

- a mittlerer Molekülabstand = Länge eines Diffusionsschrittes,
 $l_0 = \sqrt{z_0 a^2}$ mittlere Diffusionslänge,
 c Fremdmolekülkonzentration,
 N Excitonzahl,

so erhält man für die mittlere Zahl von Begegnungen mit einem Fremdmolekül in der Zeiteinheit $N \cdot \frac{c}{t_0} = Nc \frac{z_0}{\tau_0}$.

Die Lebensdauer der Excitonen unter Wirkung der Fremdmoleküle ergibt sich dann aus

$$\frac{dN}{dt} = - \left(\frac{N}{\tau_0} + \frac{Nc z_0}{\tau_0} \right).$$

Das führt zu folgender Beziehung für die relative Lebensdauer

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \frac{1}{1 + z_0 c}.$$

Eine entsprechende Beziehung sollte für die Abnahme der Fluoreszenzintensität im Grundgitterbandensystem gelten.

Die wiedergegebenen Abklingkurven der Grundgitteremission entsprechen nicht alle dem hyperbolischen Abfall. Das liegt daran, daß in den meisten Fällen eine vollständige Trennung der Grundgitter und Fremdmolekülemission nicht möglich war. Lediglich beim System Tetracen in Chrysen, das eigens unter diesem Gesichtspunkt ausgewählt wurde, war eine weitgehende Trennung der beiden Emissionskomponenten möglich und die Abklingkurve der Chrysenemission entspricht innerhalb der Meßgenauigkeit dem oben angegebenen hyperbolischen Gesetz. Aus der Halbwertskonzentration ergeben sich für das Chrysen nach obiger Vorstellung die folgenden Daten

$$z_0 = \frac{1}{c_H} = \frac{1}{3 \cdot 10^{-4}} \approx 3000 \frac{\text{Diffusionsschritte}}{\tau_0}$$

$$t_0 = 6 \cdot 10^{-12} \text{ sec}$$

und mit dem gemessenen Wert von $\tau_0 = 1,8 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$ die Diffusionslänge l_0 von 55 Molekülabständen.

In Anbetracht der Tatsache, daß die Diffusion sicher nicht ganz isotrop ist, sind diese Werte nur als eine grobe Abschätzung anzusehen. Sie stimmen größenordnungsmäßig überein mit dem Wert der Diffusionslänge des Excitons im Anthrazen, den O. SIMPSON [11] auf anderem Wege zu 460 Å bestimmt hat.

In den Lösungen II mit zwei Fremdkomponenten erscheint die Tetracenemission stark verzögert bei Anregung über das Grundgitter, praktisch unverzögert bei Anregung über die Anthrazen (bzw. Chrysen-)moleküle. Letzteres schließt eine Übertragung durch Absorption der

Anthrazen (bzw. Chrysen-)fluoreszenzstrahlung aus. Der Energieübergang kann nur durch die Dipolwechselwirkung zwischen den beiden Partnern über das inerte Zwischenmedium erfolgen. Der Prozeß wurde von TH. FÖRSTER [12] an entsprechenden flüssigen Lösungen zuerst untersucht und theoretisch erklärt. Wegen der weitgehenden Überdeckung der Anthrazenemission mit den Tetracenabsorptionsbanden ist die Wechselwirkung relativ stark. Da bei der benutzten Tetracenkonzentration von $3 \cdot 10^{-5}$ die Tetracenfluoreszenz keine Verzögerung aufweist, muß der kritische Radius für die schnelle „Resonanzübertragung“ mindestens gleich dem halben mittleren Tetracenmolekülabstand sein, also mindestens 30 Gitterkonstanten. Wegen der Orientierung der Moleküle ist auch hier mit einer Anisotropie der Übertragung zu rechnen.

In den untersuchten Lösungen sind also zwei Energieübertragungsprozesse nachweisbar — die Excitonenübertragung bei der Abgabe der Energie vom Grundgitter zu den Fremdmolekülen, die Resonanzübertragung bei der Fortleitung zwischen zwei verschiedenen Fremdmolekülen. Die Absorption der Fluoreszenzstrahlung tritt demgegenüber ganz zurück. Aus Messungen von KNAU [13] u. a. geht hervor, daß die beiden Mechanismen auch in Flüssigkeiten eine Rolle spielen.

Die Arbeit wurde im Physikalischen Institut der Universität Gießen durchgeführt. Herrn Professor Dr. W. HANLE möchte ich für sein ständiges Interesse an den Problemen herzlichst danken. Ferner sei der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die Mittel zur Beschaffung von Geräten und Material bereitstellte, und der Gesellschaft für Teerverwertung, Duisburg-Meiderich, für die Stiftung der Ausgangssubstanzen vielmals gedankt.

Literatur

- [1] Siehe Literaturübersicht bis Ende 1956 bei F.R. LIPSETT, Energy transfer in polyacene solid solutions Nat. Res. Comp. Canada 1957. — [2] CRAIG and HOBBS: J. Chem. Soc. **1955**, 539, 2302, 2309. — [3] SIDMAN, J.W.: Phys. Rev. **102**, 96 (1956). — [4] McCLURE, D.S., and O.S. SCHNEPP: J. Chem. Phys. **23**, 1575 (1955). — [5] WOLF, H. CHR.: Z. Naturforsch. **11a**, 797 (1956). — [6] McCLURE, D.S.: J. Chem. Phys. **25**, 480 (1956). — [7] SCHMILLEN, A.: Z. Physik **135**, 294 (1953). — [8] WRIGHT, G.T.: Proc. Phys. Soc. **66** (9), 777 (1953). — [9] BIRKS, J.B., and W.A. LITTLE: Proc. Phys. Soc. A **66**, 921 (1953). — [10] SANGSTER, R.C., and S.W. IRVINE jr.: J. Chem. Phys. **24**, 670 (1956). — [11] SIMPSON, O.: Proc. Roy. Soc. Lond. **238**, 402 (1956). — [12] FÖRSTER, TH.: Ann. de Phys. **2**, 55 (1948). [13] KNAU, H.: Z. Naturforsch. **12a**, 863 (1957).

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Relativmessungen der Polarisation von β -Teilchen $\text{Ti}^{204}, \text{Au}^{198}, \text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ *

Von

JOACHIM HEINTZE

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 21. Oktober 1957)

Eine Methode, mit der man durch kombinierte Vielfach- und Einzelstreuung die Polarisation von β -Teilchen messen kann, wurde für genaue Relativmessungen weiter entwickelt. Die Depolarisation durch Selbststreuung im Präparat wurde experimentell untersucht. Die Energieabhängigkeit der Apparatur wird diskutiert. Aus dem Vergleich der Polarisationen bei Ti^{204} und Au^{198} folgt für Au^{198} eine Polarisation $P = -(0,98 \pm 0,05) v/c$, wenn man für den reinen Gamow-Teller-Übergang des Ti^{204} $P = -v/c$ annimmt ($v/c \approx 0,7 - 0,9$).

1. Einleitung

Durch Polarisationsmessungen an β -Strahlen erhält man Aussagen über die β -Wechselwirkung [1] bis [4]. Man kann fast alle Fragen, die in diesem Zusammenhang auftreten, durch Relativmessungen klären. Offensichtlich lassen sich Relativmessungen genauer durchführen, als Absolutmessungen. Es wurde deshalb eine Methode [5], mit der wir zunächst die β -Polarisation des $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ gemessen hatten, für Relativmessungen weiter entwickelt. Die Methode ist dafür wegen ihrer verhältnismäßig großen Lichtstärke und wegen ihrer Variationsmöglichkeiten und den dadurch gegebenen Kontrollen besonders geeignet.

Die Apparatur spricht auf Elektronen in einem bestimmten Energiebereich an. Daher können beim Vergleich der Polarisation zweier β -Strahler Fehler nur durch Unterschiede der β -Spektren und bei der Selbststreuung im Präparat entstehen. (Die Selbststreuung sollte eine gewisse Depolarisation bewirken.) In der vorliegenden Arbeit werden diese Einflüsse untersucht und die ersten Ergebnisse mitgeteilt.

2. Apparatur

Wie bereits in einer früheren Arbeit gezeigt wurde [5], wirkt die Ablenkung eines Elektrons durch Vielfachstreuung auf den Spin weitgehend wie die Ablenkung in einem Zylinderkondensator um den gleichen Winkel. Man hat also nach der Vielfachstreuung longitudinal pola-

* Auszugsweise vorgetragen auf der Physikertagung in Heidelberg am 27. September 1957.

risierter Elektronen eine näherungsweise berechenbare transversale Komponente der Polarisation in der Streuebene, die sich durch die azimutale Asymmetrie einer nachfolgenden Einzelstreuung nachweisen läßt.

Fig. 1 zeigt die Apparatur. Es werden Elektronen registriert, die erst durch Vielfachstreuung in einem dicken Cu-Blech um 90° und dann durch Einzelstreuung in einer dünnen Au- oder Pt-Folie um 135° abgelenkt worden sind. Die Elektronen werden in zwei Zählern links (L) oder rechts (R) nachgewiesen. Jeder Zähler besteht aus zwei in Koinzidenz geschalteten Zählrohrpaaren, zwischen denen sich eine Absorberfolie von 100μ Al befindet. Die Zähler sprechen daher nur auf Elektronen mit mehr als etwa 200 keV Energie an. Sie haben eine geringe γ -Empfindlichkeit und sind sehr konstant; es werden Methan-Durchflußzähler verwendet. Die Zähler sind gegen die evakuierte Streukammer mit Hostaphan-Folien* ($1,4 \text{ mg/cm}^2$) abgeschlossen. Die Bleischicht zwischen Präparat und Zählern war bei den im folgenden beschriebenen Versuchen 5 cm dick.

Der obere Teil der Apparatur (Präparat und Cu-Blech) ist um die eingezeichnete Achse drehbar. Dadurch kann der Winkel zwischen Vielfach- und Einzelstreuebene, also zwischen Polarisations- und Analysatorebene variiert werden. Die Zählung des Drehwinkels φ ist folgendermaßen definiert: Wenn \vec{p}_1 und \vec{p}_2 die Impulse vor und nach der Vielfachstreuung sind, zeigt der Vektor $\vec{p}_1 \times \vec{p}_2$ in der Stellung $\varphi = 0$ auf den Zähler L. Für das Verhältnis der Zählraten links und rechts gilt dann:

$$\frac{L}{R} = \alpha \frac{1 + x \cos \varphi}{1 - x \cos \varphi} \quad (1)$$

α ist die apparative Asymmetrie. x hängt mit der Polarisation zusammen; abgesehen von einem konstanten Faktor, der die endliche Größe der Raumwinkel berücksichtigt, gilt:

$$x = \frac{\int_0^{E_{\max}} N(E) W(E) a(E) P(E) \sin \left\{ \frac{\pi}{2} (mc^2/E + mc^2) \right\} dE}{\int_0^{E_{\max}} N(E) W(E) dE} \quad (2a)$$

E = kinetische Energie der β -Teilchen,

$N(E)$ = β -Spektrum,

$W(E)$ = Nachweiswahrscheinlichkeit für β -Teilchen der Energie E ,

$a(E)$ = Asymmetriefaktor bei der Mott-Streuung [6], [7],

$P(E)$ = Longitudinale β -Polarisation vor der Vielfachstreuung.

* Polyterephthalsäureester. Der Firma Kalle u. Co., Wiesbaden, danke ich für die freundliche Überlassung verschiedener Folien.

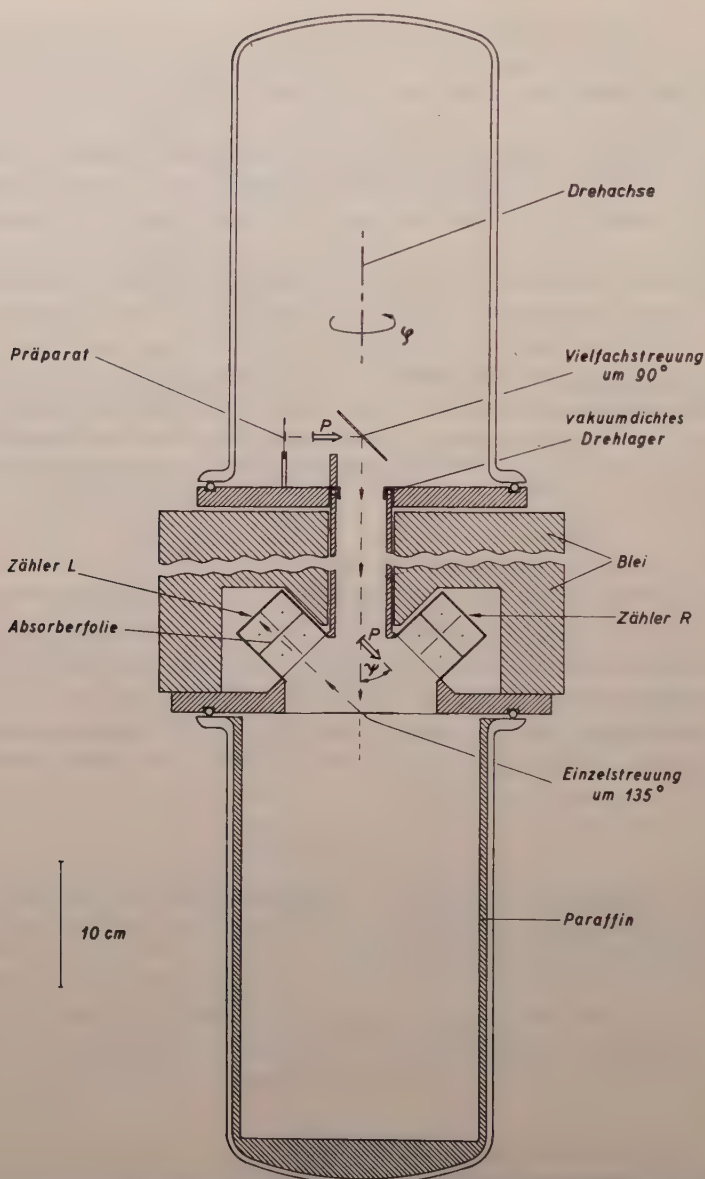


Fig. 1. Apparatur (Stellung $\varphi = 270^\circ$). Die Bahn eines Elektrons ist eingezeichnet. Nach der Vielfachstreuung um 90° schließen der Polarisationsvektor P und der Elektronenimpuls den Winkel $\psi = (\pi/2) (mc^2/E + mc^2)$ ein

Gl. (2a) folgt aus den früher angegebenen Formeln [5], wenn man das Energiespektrum der Elektronen explizit berücksichtigt. Die Gleichung gilt unter zwei Voraussetzungen:

- a) Die Elektronen gelangen nur durch Einzelstreuung von der Einzelstreuungsfolie in die Zähler.
- b) Die Vielfachstreuung wirkt auf die Elektronen wie eine Ablenkung im elektrostatischen Feld.

Unter recht allgemeinen Bedingungen [1] bis [4] gilt nun:

$$P(E) = P_0 \frac{v}{c}, \quad (3)$$

wobei P_0 nicht von der Energie abhängt. Dann kann man statt (2a) schreiben:

$$x = P_0 \frac{\int N(E) W(E) A(E) dE}{\int N(E) W(E) dE} \quad (2b)$$

mit $A(E) = a(E) \frac{v}{c} \sin \left\{ \frac{\pi}{2} (mc^2/E + mc^2) \right\}$.

Auch wenn Gl. (3) nicht erfüllt ist, ist die Schreibweise (2b) zweckmäßig. P_0 ist dann ein Mittelwert von $P \cdot c/v$ über den Durchlaßbereich der Apparatur.

Das Ziel der Messungen ist, Relativwerte von P_0 für verschiedene β -Strahler zu gewinnen. Wir müssen deshalb diskutieren, wie der Faktor von P_0 in Gl. (2b) von den β -Spektren abhängt.

3. Energieabhängigkeit der Apparatur

Die Funktionen $W(E)$ und $A(E)$ aus Gl. (2b) wurden abgeschätzt. Die Ansprechwahrscheinlichkeit $W(E)$ ist durch die Energieabhängigkeit der Einzelstreuung und durch die Durchlässigkeit der Absorberfolien gegeben. Die Zahl der am Cu-Blech um 90° gestreuten Elektronen hängt praktisch nicht von der Energie ab [8]. Nach Messungen von BORHE [8] in ähnlicher Geometrie sind bei der Rückstreuung die mittleren Energieverluste relativ klein und die großen Energieverluste ziemlich selten. Die mittleren Energieverluste sind näherungsweise bei den Abschätzungen berücksichtigt. Für den Asymmetriefaktor $a(E)$ wurden Werte von SHERMAN [7] benutzt.

Fig. 2 zeigt die berechneten Kurven. Unter unseren Versuchsbedingungen muß die Abhängigkeit vom β -Spektrum relativ gering sein, weil im Durchlaßbereich der Apparatur der effektive Asymmetriefaktor $A(E)$ praktisch konstant ist. Dies Ergebnis ist weitgehend vom genauen Verlauf der Kurven in Fig. 2 unabhängig.

Ein zweiter Punkt muß noch untersucht werden. In unserer Versuchsanordnung sind die Bedingungen a) und b) für die Gültigkeit der Gln. (2a) und (2b) nicht erfüllt. Wesentlich ist aber, daß für Relativmessungen nicht die absolute Größe der Abweichungen von Gl. (2a), sondern nur deren Energieabhängigkeit interessiert.

Bei der Vielfachstreuung der Elektronen im Cu-Blech ist mit einer kleinen Depolarisation zu rechnen. Da sich jedoch die mittlere Zahl der Stöße, durch die die Elektronen abgelenkt wurden, nur sehr wenig mit der Energie ändert [9], sollte dieser Depolarisationseffekt praktisch nicht von der Energie abhängen. Das gleiche gilt für etwaige Abweichungen des Winkels ψ in Fig. 1 von $\frac{\pi}{2} (mc^2/E + mc^2)$ in Gl. (2a).

Ein Teil der Elektronen wird in der Einzelstreufolie statt durch Einzelstreuung durch Mehrfachstreuung abgelenkt [6], [5]. Dieser Anteil muß mit wachsender Elektronenenergie abnehmen. Obgleich die

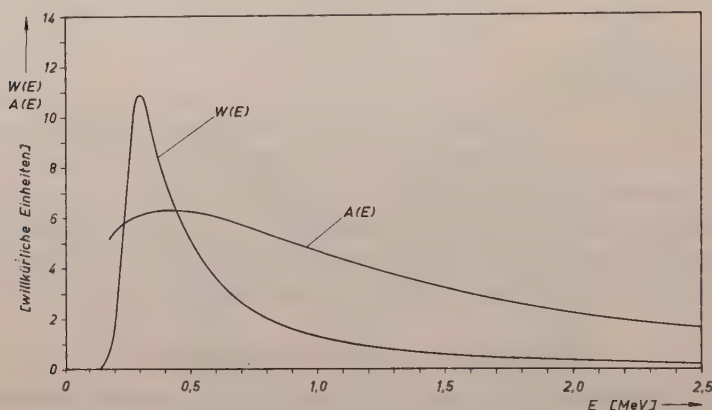


Fig. 2. Ansprechwahrscheinlichkeit $W(E)$ und effektive Asymmetrie $A(E)$ [Gl. (2b)] als Funktion der Elektronenenergie. Die Kurven sind näherungsweise berechnet

Ansprechwahrscheinlichkeit $W(E)$ bei hohen Energien rasch abfällt, könnten dadurch bei energiereichen β -Strahlern die Werte für x etwas vergrößert werden. Diese zusätzliche Energieabhängigkeit läßt sich jedoch experimentell kontrollieren: Es müßte dann das Ergebnis der Relativmessung an zwei β -Strahlern von der Dicke der Einzelstreufolie abhängen.

Bei der Abschätzung der Energieabhängigkeit mit Hilfe von Fig. 2 werden außerdem energiereiche Elektronen vernachlässigt, die bei der Reflexion im Cu-Blech einen großen Energieverlust erlitten haben, und die dadurch in den Durchlaßbereich der Apparatur kommen. Wenn das β -Spektrum sehr viele Elektronen oberhalb des Durchlaßbereichs enthält, könnte dadurch der gemessene Wert für x verkleinert werden.

Es ist geplant, diese beiden Einflüsse experimentell noch genauer zu untersuchen. Vorerst können genaue Relativmessungen nur an β -Strahlern durchgeführt werden, deren Maximalenergien sich nicht zu sehr unterscheiden.

4. Präparate und Einzelstreufolien

Die Präparatlösungen * wurden auf Hostaphan-Folien ($1,4 \text{ mg/cm}^2$), die auf Plexiglasrähmchen aufgeklebt waren, eingetrocknet, und zwar auf einer kreisförmigen Fläche von etwa 12 mm Durchmesser, die vorher mit etwas Insulin benetzt war. Als Einzelstreufolien dienten aufgedampfte Goldschichten ** oder Pt-Wollastone-Folien auf $1,4 \text{ mg/cm}^2$ Hostaphan. Die im folgenden beschriebenen Versuche wurden mit $0,73 \text{ mg/cm}^2 \text{ Au}$ und $1,95 \text{ mg/cm}^2 \text{ Pt}$ durchgeführt.

5. Messungen

Im allgemeinen wurde die der Polarisierung proportionale Größe x aus den unter 0° und 180° gemessenen Werten L/R berechnet. Variiert wurde gelegentlich die Dicke der Einzelstreufolie. Der Untergrund wurde

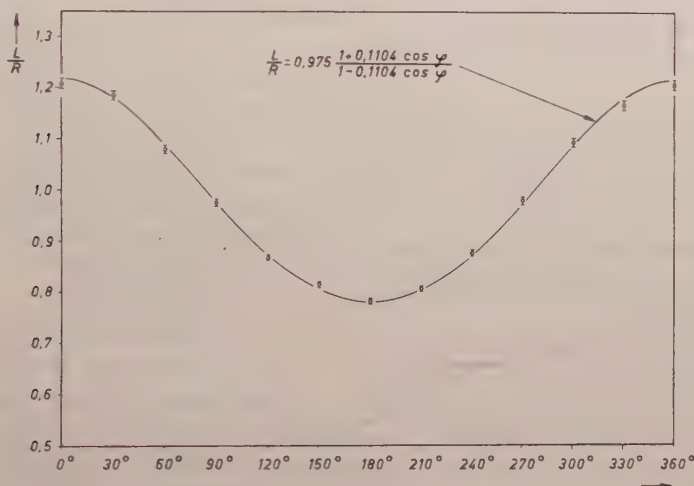


Fig. 3. Das Verhältnis der Zählraten L/R als Funktion des Winkels φ . Die ausgezogene Kurve ist nach Gl. (1) mit passenden Werten für α und x berechnet. Der Untergrund und eine kleine apparative Winkelabhängigkeit sind berücksichtigt

jedesmal unter 0° und 180° mit einer Hostaphan-Folie ($1,4 \text{ mg/cm}^2$) an Stelle der Einzelstreufolie, also mit einem leeren Folienträger gemessen. Der Untergrund enthielt Elektronen, die aus dem paraffinverkleideten Auffänger zurückgestreut wurden und eventuell γ -Strahlung. Er betrug 10 bis 20% der Zählrate mit 2 mg Pt/cm^2 als Einzelstreufolie.

Winkelabhängigkeit. Zunächst wurde untersucht, ob die Winkelabhängigkeit des Verhältnisses der Zählraten L/R der Gl. (1) entspricht. Meßergebnisse mit $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ sind in Fig. 3 dargestellt. In guter Über-

* „Processed Isotopes-High specific Activity“ Amersham/England.

** Die Goldschichten hat freundlicherweise Herr F. REINOLD aufgedampft.

einstimmung mit der ausgezogenen Kurve, die nach Gl. (1) mit passenden Werten für α und x berechnet ist, liegt die Asymmetrie bei 0 und 180° , also senkrecht zur Vielfachstrebenebene.

Dies zeigt, daß die Nichterhaltung der Parität bereits mit ganz einfachen Mitteln nachgewiesen werden kann. Da die Streuprozesse sicher

spiegelinvariant sind, könnte durch Polarisierungseffekte bei der Doppelstreuung unpolarisierter Elektronen nur eine Asymmetrie unter 90° und 270° entstehen. Der Effekt in Fig. 3 kann also nur durch fehlende Spiegelsymmetrie der Elektronen selbst (longitudinale Polarisation) oder natürlich durch mangelhafte Spiegelsymmetrie der Apparatur zustande kommen. Die zweite Möglichkeit läßt sich durch Verdrehen der Einzel-

streufole und durch eine Messung mit Al als Einzelstreufole ausschließen, da der Asymmetriefaktor bei der Mott-Streuung [7] für Al fast verschwindet. Die apparative Asymmetrie erwies sich als klein und reproduzierbar. Sie ist in Fig. 3 bereits korrigiert. Die unkorrigierten Meß-

punkte sind gegen die ausgezogene Kurve um etwa 3° verschoben.

Reproduzierbarkeit. Um die Reproduzierbarkeit zu prüfen, wurde zwischen den verschiedenen Versuchen wiederholt mit $\text{Si}^{90} + \text{Y}^{90}$ gemessen. Tabelle 1 zeigt die Ergebnisse. Es wurden drei verschiedene Präparate (Schichtdicke etwa 2 mg/cm^2 bis etwa 4 mg/cm^2) verwendet. Die Werte stimmen gut überein. Die Apparatur, mit der die ersten Messungen [5]

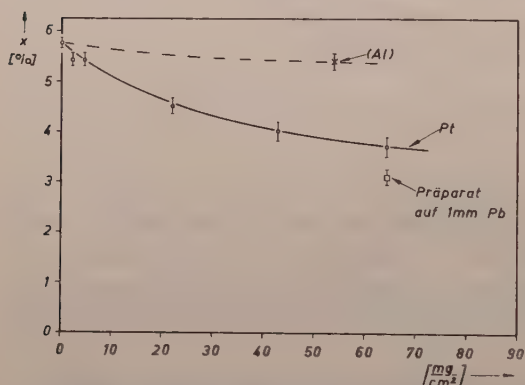


Fig. 4. Zur Selbststreuung. Unmittelbar vor das Präparat sind Pt (○) bzw. Al (×) Folien gestellt deren Dicke auf der Abszisse angegeben ist. x nimmt nur langsam mit der Foliendicke ab. (○: s. Text)

durchgeführt wurden, ergab unter entsprechenden Bedingungen die gleichen Werte, obgleich sie sich in Einzelheiten der Konstruktion von der in dieser Arbeit verwendeten wesentlich unterschied.

Depolarisation durch Streuung in Präparat und Unterlage. Man könnte vermuten, daß bei Polarisationsmessungen die Selbststreuung der β -Teilchen im Präparat etwa ebenso sehr stört, wie bei Winkelkorrela-

tionsmessungen mit Elektronen [9]. Zur Untersuchung dieser Depolarisation wurden unmittelbar vor das Präparat Pt-Folien gebracht. Die Depolarisation ist erstaunlich gering, wie Fig. 4 zeigt. Selbst wenn man vor das Präparat 60 mg/cm^2 Pt und hinter das Präparat eine dicke Bleischicht stellt, sinkt die Polarisation nur auf etwa 55% (Punkt \square in Fig. 4). In diesem Falle sollten die ursprünglichen Emissionsrichtungen der senkrecht aus dem Präparat austretenden Elektronen schon stark verwischt sein. Da die Streuung quadratisch von der Ordnungszahl abhängt, sollte bei leichten Elementen auch bei beträchtlicher Schichtdicke die Depolarisation gering sein. Dies bestätigte eine Messung, bei der eine 200μ dicke Al-Folie vor das Präparat gesetzt war (Fig. 4).

Die Rückstreuung in der Präparatunterlage ist nicht sehr kritisch, wie Fig. 5 zeigt. Bei diesen Messungen wurde hinter das Präparat eine sättigungsdicke Schicht mit der Ordnungszahl Z gestellt. Die aus der

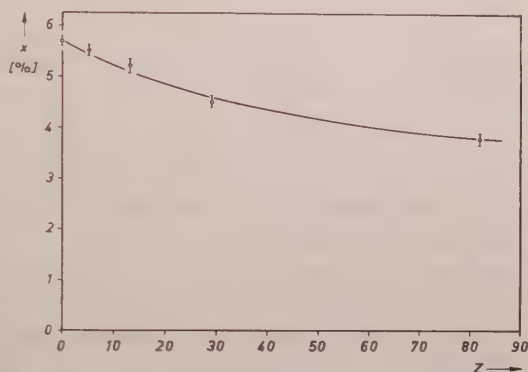


Fig. 5. x als Funktion der Ordnungszahl einer sättigungsdicken Präparatunterlage. Bei $Z=0$ ist der Meßwert mit dem Präparat auf $1,4 \text{ mg/cm}^2$ Hostaphan als Unterlage eingetragen

Unterlage zurückgestreuten Elektronen besitzen noch eine schwache Polarisation im gleichen Sinne, wie die direkt nach vorn emittierten.

Man kann aus diesen Messungen schließen, daß auch bei der Selbststreuung der Spin ähnlich beeinflusst wird wie bei einer elektrostatischen Ablenkung. Im Schwerpunkt des Durchlaßbereichs (350 keV) wird dann der Spin um 40% mit der Bahn mitgeführt.

Da der Durchlaßbereich der Apparatur recht gut begrenzt ist, können die Ergebnisse in Fig. 4 auch bei Messungen an anderen β -Strahlern zur Abschätzung der Depolarisation durch Selbststreuung herangezogen werden*.

Relativmessungen. Die Ergebnisse der Messungen am Ti^{204} und Au^{198} sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Zum Vergleich sind auch die Werte für $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ angegeben.

Nach den bei der Präparatdicke t gemessenen Werten $x_1(t)$ und $x_2(t)$ sind die mit Fig. 4 auf $t=0$ extrapolierten Werte für x_2 angeführt. Der durch die Extrapolation bedingte zusätzliche Fehler wurde auf 2%

* Bei β -Energien unterhalb des Durchlaßbereichs der hier beschriebenen Apparatur sollte die Depolarisation stärker sein, nicht nur wegen der stärkeren Streuung, sondern auch wegen der geringeren Mitführung der Spins.

Tabelle 2

	E_{\max} [MeV]	t [$\frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$]	$x_1(t)$ [%]	$x_2(t)$ [%]	$x_2(t=0)$ [%]	P_0 relativ zu $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$
Ti^{204}	0,77	13 ★ 3,5	$10,03 \pm 0,25$	$6,24 \pm 0,17$ $6,48 \pm 0,12$	$6,8$ } $6,75 \pm 0,2$ $6,7$ }	$0,99 \pm 0,03$
Au^{198}	0,96	3 0,2	$11,1 \pm 0,5$	$6,20 \pm 0,17$ $6,75 \pm 0,25$	$6,4$ } $6,60 \pm 0,25$ $6,75$ }	$0,97 \pm 0,04$
$\{\text{Sr}^{90}$ $\text{Y}^{90}\}$	$0,54$ } $2,24$ }	2—4	$11,15 \pm 0,07$	$6,59 \pm 0,07$	$6,72 \pm 0,15$	1,00

t : Dicke der Präparatschicht (beim Ti^{204} und Au^{198} nur Ti bzw. Au gerechnet); $x_1(t)$: gemessener Wert (Einzelstreufolie $0,73 \text{ mg/cm}^2$ Au); $x_2(t)$: gemessener Wert (Einzelstreufolie $1,95 \text{ mg/cm}^2$ Pt).

geschätzt. Berücksichtigt man noch die äußerst geringe Abhängigkeit vom β -Spektrum nach Gl. (2b) mit den Kurven in Fig. 2, so erhält man die in der letzten Spalte angegebenen Relativwerte für die in Gl. (3) definierte Größe P_0 . Da die Spektren des Ti^{204} und Au^{198} hinreichend ähnlich sind, und da zur Zählrate des $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ das Y^{90} nur etwa 25 % beiträgt, sollten die am Ende des Abschnitts 3 erwähnten energieabhängigen Störeffekte vernachlässigbar sein. Dafür spricht auch, daß die Verhältnisse der auf $t=0$ extrapolierten Werte von x_1 mit den entsprechenden Relativwerten von x_2 gut übereinstimmen. Ferner haben Messungen an energiereichen β -Strahlern** gezeigt, daß diese Störeffekte auch bei stark verschiedenen β -Energien nicht sehr groß sind.

Die Fehlergrenzen der Werte für P_0 in Tabelle 2 sollten daher alle systematischen Fehler einschließen. Innerhalb dieser Fehlergrenzen haben Ti^{204} , Au^{198} und Sr^{90} die gleiche β -Polarisation.

6. Diskussion

Ti^{204} , Sr^{90} und Y^{90} sind einfach unique verbotene Übergänge. Zur Wechselwirkung tragen daher nur die Gamow-Teller-Kopplungen bei. Au^{198} ist dagegen ein einfach verbotener Übergang mit $\Delta I=0$ ($2^- \rightarrow 2^+$); es sollten daher auch die Fermi-Kopplungen beteiligt sein. Einfach-unique verbotene Übergänge haben dieselbe Polarisation wie erlaubte reine Gamow-Teller-Übergänge [2]. Nimmt man an, daß deren Polarisation

* Die Substanz war ungleichmäßig verteilt. Wert nach Untersuchung mit dem Mikroskop. Beim zweiten Ti^{204} -Präparat wurde der gesättigten radioaktiven Lösung auf dem Präparatträger ein Tropfen Alkohol zugesetzt. Dadurch wurde das Ti als sehr feiner und gleichmäßig verteilter Niederschlag ausgefällt. Die Au-Präparate wurden aus Au-Sol hergestellt; sie waren deshalb sehr homogen.

** Die vorläufigen Ergebnisse dieser Messungen (P_0 berechnet wie die in Tabelle 2 angegebenen Werte) sind: P^{32} ($E_{\max}=1,7 \text{ MeV}$): $P_0=1,00 \pm 0,02$; Pr^{144} ($E_{\max}=3,0 \text{ MeV}$): $P_0=0,96 \pm 0,04$. Bei diesen Werten sind jedoch systematische Fehler, die die angegebenen Fehlergrenzen übersteigen, nicht ausgeschlossen.

$P = -v/c$ ist, wofür alle bisherigen Untersuchungen an solchen Übergängen sprechen, so folgt für

$$\text{Au}^{198}: P = -(0,98 \pm 0,05) \frac{v}{c} \quad \left(\frac{v}{c} \approx 0,7 - 0,9 \right).$$

Dieser Wert steht im Widerspruch zu Ergebnissen von DE WAARD und POPPEMA [10] und der Illinoisgruppe [11], nach denen beim Au^{198} $|P|$ wesentlich kleiner als v/c ist. Das Ergebnis $P = -v/c$ ist nach ALDER, STECH und WINTER [2] zu erwarten, wenn für die Fermi-Kopplungskonstanten gilt:

$$C'_S = -C_S \quad C'_V = C_V. \quad (4)$$

Eine kleine Polarisation beim Au^{198} wäre dagegen mit der Annahme vereinbar, daß bei reinen Fermi-Übergängen keine Polarisation auftritt [2]. Nach neueren Messungen [12] am N^{13} ist dies auszuschließen, während die Gültigkeit der Gln. (4) wahrscheinlich gemacht wird.

Eine quantitative Diskussion der Polarisation des Au^{198} ist schwierig, da in den Ausdruck für die Polarisation mehrere Kern-Matrixelemente mit ihren Phasen eingehen. Jedenfalls sollte die β -Polarisation beim Au^{198} von den Fermi-Kopplungskonstanten abhängen, da beim Au^{198} der Interferenzterm im Ausdruck für die Korrelation zwischen β -Strahlung und zirkular polarisierter γ -Strahlung groß ist [13].

Herrn Professor Dr. O. HAXEL danke ich für das der Arbeit entgegengebrachte fördernde Interesse. Herrn Dr. H. KOPPE, Herrn Dr. B. MÜHLSCHLEGEL und Herrn Dr. G. KRAMER danke ich für aufschlußreiche Diskussionen. Besonders möchte ich Herrn W. BÜHRING danken, der mich bei den Messungen äußerst tatkräftig unterstützt hat.

Die Arbeit wurde unter Verwendung von Mitteln der Deutschen Forschungsgemeinschaft durchgeführt.

Anmerkung bei der Korrektur. Die in dieser und der früheren Arbeit [5] gemachten Annahmen über den Einfluß der Vielfachstreuung auf die Polarisation der β -Teilchen wurden inzwischen durch Rechnungen von B. MÜHLSCHLEGEL und H. KOPPE (Z. Physik, im Druck) bestätigt.

Literatur

- [1] LEE, T.D., and C.N. YANG: Phys. Rev. **105**, 1671 (1957). — [2] ALDER, K., B. STECH und A. WINTER: Phys. Rev. **107**, 728 (1957) und unveröffentlichter Bericht. — [3] JACKSON, J.D., S.B. TREIMAN and H.W. WYLD jr.: Phys. Rev. **106**, 517 (1957). — [4] CURTIS, R.B., and R.R. LEWIS: Phys. Rev. **107**, 543 (1957). — [5] HEINTZE, J.: Z. Physik **148**, 560 (1957). — [6] TOLHOEK, H.A.: Rev. Mod. Phys. **28**, 277 (1956). — [7] SHERMAN, N.: Phys. Rev. **103**, 1601 (1956). — [8] BOTHE, W.: Z. Naturforsch. **4a**, 542 (1949). — [9] SIEGBAHN, K.: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy. Amsterdam: North Holland Publishing Comp. 1955. — [10] WAARD, H. DE, u. O. J. POPPEMA: Physica, Haag **23**, 597 (1957). — [11] FRAUENFELDER, H., R. BOBONE, E. v. GOELER, N. LEVINE, H.R. LEWIS jr., R.N. PEACOCK, A. ROSSI und G. DEPASQUALI: Phys. Rev. **107**, 909 (1957). — [12] BOEHM, F., T.B. NOVEY, C.A. BARNES, u. B. STECH: Vorabdruck. [13] BOEHM, F., and H.A. WAPSTRA: Phys. Rev. **107**, 1462 (1957).

Aus dem Institut für Physik
im Max-Planck-Institut für medizinische Forschung, Heidelberg

β -Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58}

Von

H. DANIEL

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 6. November 1957)

Das β^+ -Spektrum des Co^{58} wurde mit einem doppelfokussierenden β -Spektrometer untersucht. Es wurde ein zweifach verbotener Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58} gefunden, der eine Intensität von etwa $6 \cdot 10^{-6}$ pro Zerfall besitzt.

1. Ziel der Untersuchung

Der Kern Co^{58} darf ein besonderes Interesse beanspruchen, weil er einer der wenigen β -aktiven Kerne ist, die sich leicht ausrichten lassen.

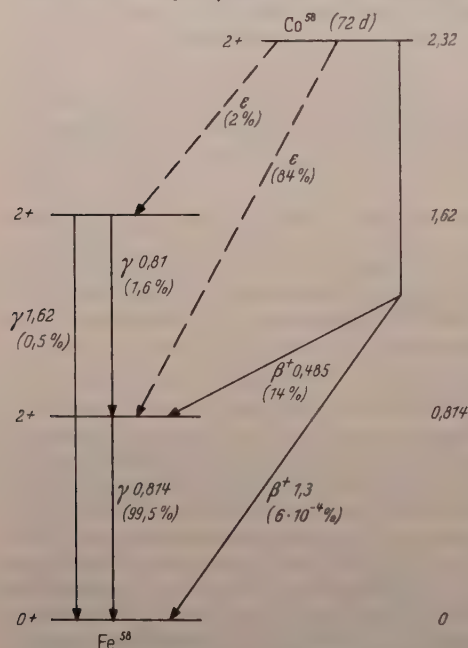


Fig. 1. Zerfallsschema des Co^{58} . Energien in MeV

Überdies ist die Kenntnis höher verbotener β -Übergänge auf wenige Beispiele beschränkt. Der Grund hierfür ist in der Tatsache zu suchen, daß Kerne, bei denen solche Übergänge zu erwarten sind, meist auch die Möglichkeit zu erlaubter oder einfach verbotener β -Emission besitzen und deshalb die Beobachtung der höher verbotenen Übergänge sehr erschwert wird.

Co^{58} (72 d) zerfällt hauptsächlich durch β^+ -Emission und Elektroneneinfang zum 814 keV-Niveau von Fe^{58} ; außerdem ist Elektroneneinfang zum 1620 keV-Niveau von Fe^{58} festgestellt worden. Beide Übergänge führen von einem $(2+)$ -Niveau zu $(2+)$ -

Niveaus und sind also erlaubt. Der Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58} ($2+ \rightarrow 0+$) ist dagegen zweifach verboten

und hat sich bisher der Beobachtung entzogen. Die Grenzenergie ist 1,30 MeV. Ziel dieser Untersuchung war es, die Intensität des Übergangs zwischen den Grundzuständen zu bestimmen.

Fig. 1 zeigt das Zerfallsschema [1] des Co^{58} . Der neu gefundene Übergang zwischen den Grundzuständen ist miteingezeichnet.

2. Meßverfahren

Das Co^{58} wurde in Harwell aus spektralreinem Nickel durch $\text{Ni}^{(58)}(n, p) \text{Co}^{58}$ hergestellt. Das Targetmaterial enthielt nur spurenweise Verunreinigungen an Mg, Al, Si, Fe und Cu. Insbesondere fehlten Sr ($< 10^{-5}$), Pd ($< 5 \cdot 10^{-5}$), Th ($< 5 \cdot 10^{-4}$) und U ($< 10^{-3}$). Das Co^{58} lag als trägerfreie chemisch abgetrennte Lösung vor, die etwas Co^{60} enthielt ($< 5 \cdot 10^{-3}$), das als β -Strahler aber nicht störte. Das Präparat wurde erst zwei Monate nach Bestrahlungsende verwendet, um eventuelle kurzlebige Verunreinigungen abklingen zu lassen. Die Quelle wurde durch Eintrocknen der Lösung auf einer dünnen Glimmerfolie bereitet. Die Stärke betrug bei Meßbeginn 0,4 mC.

Zur Messung diente ein doppelfokussierendes β -Spektrometer mit 20 cm mittlerem Bahnradius, das später ausführlich beschrieben werden soll. Der Detektor war ein Szintillationszähler, dessen Anthracenkristall die Abmessungen Höhe 6 cm, Breite 3 cm und Dicke 1,4 cm besitzt. Zur Reduzierung des Untergrundes wurde er mit Einkanal-Diskriminierung benutzt. Der Detektor war gegen die Quelle sorgfältig mit Blei abgeschirmt.

Zur Bestimmung der Intensität bei vorgegebenem Elektronenimpuls wurde die Differenz der Zählraten bei geöffneter und geschlossener Austrittsblende gebildet. Um die Einflüsse von Schwankungen in der Ansprechwahrscheinlichkeit des Szintillationszählers zu reduzieren, wechselten Messungen mit offenem Spalt und mit geschlossenem Spalt in Abständen von etwa 2 Std miteinander ab. Gemessen wurde bei den Energien 770, 951, 1135 und 1323 keV. Zur Prüfung, ob die Spaltstellung den Untergrund im Zähler beeinflußt, wurden ferner die Zählraten bei offenem und bei geschlossenem Spalt mit einer Magnetfeldeinstellung etwas oberhalb der erwarteten β -Grenze von 1,3 MeV aufgenommen, wobei der Szintillationszähler auf Positronen kleinerer Energie eingestellt war. Der geringe Einfluß wurde bei der Auswertung berücksichtigt.

3. Ergebnisse

Fig. 2 zeigt das gemessene Spektrum. Die Grenzenergie liegt offenbar oberhalb von 1 MeV; 1 MeV entspricht 4744 Gauß-cm. Die Halbwertszeit der energiereichen Komponente ergab sich zu $t > 10 d$.

Da die beobachtete β^+ -Gruppe zu Co^{58} gehören muß (s. Ziff. 4), wurde zur Auswertung die Fermi-Funktion für Co^{58} benutzt. Für Spektren

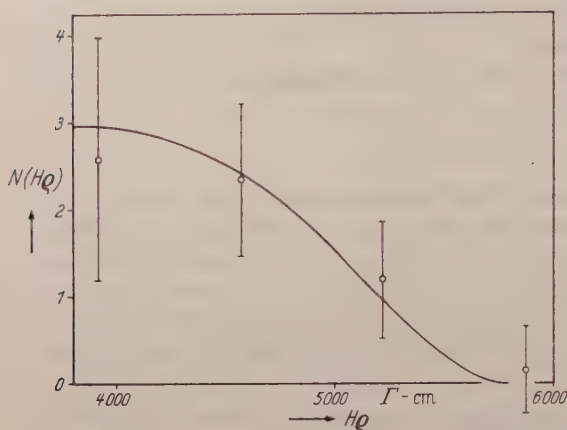


Fig. 2. Energiereicher Teil des β^+ -Spektrums des Co^{58} . Aufgetragen: Intensität pro (HQ) -Intervall gegen HQ . Die eingezeichneten Fehler sind statistische Fehler. Die Kurve wurde aus der Fermi-Geraden Fig. 3 konstruiert

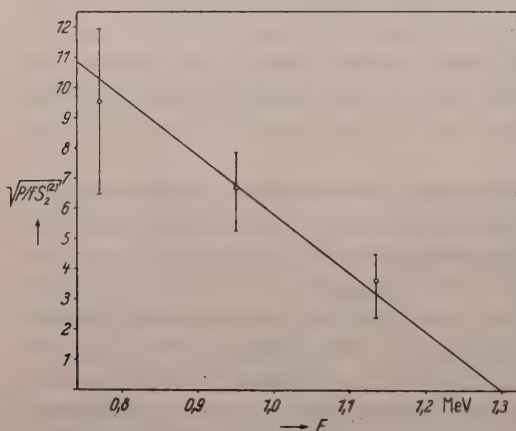


Fig. 3. Energiereicher Teil des β^+ -Spektrums des Co^{58} in Fermi-Darstellung. Die eingezeichneten Fehler sind statistische Fehler

vom Typ Spinänderung zwei ohne Paritätswechsel erwartet man keine erlaubte Form, sondern eine verbotene Form, die mit dem Korrektionsfaktor

$$\hat{S}_2^{(2)} \sim p^2 + \lambda q^2$$

in die erlaubte übergeführt wird; p = Elektronenimpuls, q = Neutrinoimpuls; $\lambda \geq 0$ ist als freier Parameter zu betrachten [2]. Als Grenzenergie wurden 1,30 MeV zugrunde gelegt. Die beste Übereinstimmung brachte $\lambda = 0$.

Fig. 3 zeigt die so korrigierte Fermi-Kurve. Der Kontrollmeßpunkt bei 1323 keV ist unberücksichtigt geblieben, da er oberhalb der β -Grenze von 1,30 MeV liegt. Die Gerade ist durch Ausgleichsrechnung angepaßt.

Durch Vergleich mit dem Spektrum von 485 keV Grenzenergie (s. Fig. 1) ergab sich die Intensität des energie-

reichen Übergangs zu $(4,50 \pm 1,22) \cdot 10^{-5}$ pro Positron und $(6,30 \pm 1,71) \cdot 10^{-6}$ pro Zerfall des Co^{58} ; angegeben ist der mittlere statistische Fehler.

4. Diskussion

Da als Ausgangsmaterial für die Quelle spektralreines Nickel benutzt worden war und das entstandene Kobalt nochmals chemisch abgetrennt

worden war, erschien es nicht sehr sinnvoll, die Zuordnung der beobachteten β^+ -Gruppe zum Co durch weitere chemische Trennungen erhärten zu wollen. Die Abwesenheit störender Fremdaktivitäten ließ sich aber auf andere Weise sichern. Eine Durchsicht einer neuen Isotopentabelle [3] zeigte nur sechs Fremdisotope auf, von denen die fragliche β^+ -Gruppe stammen könnte (Grenzenergie $E_0 > 1 \text{ MeV}$, Halbwertszeit $t > 10 d$): Al^{26} ($10^6 a$), Co^{56} ($72 d$), Rb^{84} ($34 d$), Rh^{102} ($215 d$), J^{126} ($13 d$) und Hg^{194} — Au^{194} ($130 d$). Durch (n, γ) -Prozesse kann keine dieser Aktivitäten aus stabilen Isotopen gebildet werden. Aus (n, p) -Reaktionen können nur Rb^{84} , Rh^{102} und J^{126} stammen. Von den dazu nötigen Verunreinigungen im Target, Sr^{84} , Pd^{102} bzw. Xe^{126} , scheidet Xe als Edelgas aus. Sr^{84} und Pd^{102} besitzen Isotopenhäufigkeiten von 0,5 % bzw. 0,8 %, die nach den Angaben unter Ziff. 2 viel zu gering sind, als daß störende β^+ -Aktivitäten hätten erzeugt werden können. Verunreinigungen aus $(n, 2n)$ -Prozessen scheiden wegen der Seltenheit dieser Reaktionen im Reaktor und wegen der Reinheit des Targets aus, Verunreinigungen aus Spaltprozessen wegen der Reinheit des Targets.

Die beobachtete β^+ -Gruppe muß also zum Co^{58} gehören.

Die Messung ist zu ungenau, um den Wert des Parameters λ (Ziff. 3) zu fixieren. Ein größeres λ würde die Emission weicher Elektronen bevorzugen und deshalb eine höhere Gesamtintensität nach sich ziehen. Berücksichtigt man dies sowie die Unsicherheit in der Einfangintensität und setzt als Beitrag der Statistik zu den Fehlergrenzen den dreifachen mittleren Fehler an, so kommt man zu dem folgenden Wert der Intensität des 1,3 MeV-Übergangs pro Zerfall: $\left(6,3 \begin{smallmatrix} +8,0 \\ -5,4 \end{smallmatrix}\right) \cdot 10^{-6}$. Daraus bestimmt sich der $\log ft$ zu $12,9 \begin{smallmatrix} +0,9 \\ -0,4 \end{smallmatrix}$. Der Wert von $\log \left[\left(\frac{\alpha Z}{\varrho} \right)^2 p_0^2 ft \right]$ ist $16,2 \begin{smallmatrix} +0,9 \\ -0,4 \end{smallmatrix}$; α = Feinstrukturkonstante, Z = Ordnungszahl, $\varrho = r_0 A^{\frac{1}{3}}$ = Kernradius ($r_0 = 1,4 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ gesetzt), p_0 = maximaler Elektronenimpuls. Die sonst für Übergänge mit Spinänderung zwei ohne Paritätswechsel gefundenen Werte liegen [2] bei $\log ft \approx 13$ und $\log \left[\left(\frac{\alpha Z}{\varrho} \right)^2 p_0^2 ft \right] \approx 16$. Offensichtlich passen die Daten für Co^{58} gut in den Rahmen des bisher Bekannten.

Die Intensität des Übergangs zwischen den Grundzuständen ist viel zu gering, um einen erkennbaren Einfluß etwa auf die gemessene Anisotropie [4] der β^+ -Strahlung ausgerichteter Kerne zu haben.

Herrn Dr. C.E. MELLISH von der Isotope Division in Harwell danke ich für Auskünfte über die Herstellung des Co^{58} . Besonderer Dank gebührt der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die durch ihre großzügige Unterstützung den Bau des doppelfokussierenden β -Spektrometers ermöglicht hat.

Literatur

- [1] GRAVE, M.A., G.A. JONES and J.O. NEWTON: *Phil. Mag.* **1**, 363 (1956). — FRAUENFELDER, H., N. LEVINE, A. ROSSI and S. SINGER: *Phys. Rev.* **103**, 352 (1956). — GRIFFING, D.F., and J.C. WHEATLEY: *Phys. Rev.* **104**, 389 (1956). — COOK, C.S., and F.M. TOMNOVEC: *Bull. Amer. Phys. Soc.* **1**, 253 (1956). — ROBINSON, B.L., and R.W. FINK: *Bull. Amer. Phys. Soc.* **1**, 40 (1956). — CORK, J.M., M.K. BRICE and L.C. SCHMIDT: *Phys. Rev.* **99**, 703 (1955). — [2] SIEGBAHN, K. (Herausgeber): *β - and γ -ray Spectroscopy*, Kap. X u. XI. Amsterdam 1955. — [3] DJELEPOV, B.S., u. L.K. PECKER: *Zerfallsschemata radioaktiver Isotope*. Moskau 1957. — [4] POSTMA, H., W. J. HUISKAMP, A.R. MIEDEMA, M. J. STEENLAND, H.A. TOLHOEK u. C. J. GORTER: *Physica*, Haag **23**, 259 (1957). — AMBLER, E., R.W. HAYWARD, D.D. HOPPES, R.P. HUDSON and C.S. WU: *Phys. Rev.* **106**, 1361 (1957).

Aus dem Röntgen-Institut der Technischen Hochschule Stuttgart und dem Institut für Metall-Physik am Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart

Berechnung der Atomverteilungskurven verschiedener Strukturmodelle

Von

F. HERRE und H. RICHTER

Mit 9 Figuren im Text

(Eingegangen am 11. September 1957)

Zur Struktur-Bestimmung nichtkristalliner Stoffe ist eine genaue Intensitätsmessung notwendig. Nach DEBYE [1] vergleicht man die experimentelle Streukurve mit der berechneten (Streukurven-Vergleich) und nach RICHTER, BREITLING und HERRE [6], [10] kann man auch die experimentelle Atomverteilungskurve mit der berechneten vergleichen (Atomverteilungskurven-Vergleich). Die Berechnung der Atomverteilungskurve wird für einige charakteristische Fälle durchgeführt, und zwar zunächst für den Fall des Gases und anschließend für den Festkörper. Hier sind zwei Fälle zu unterscheiden:

1. Gleiche Abstandsstatistik für jedes Atom und
2. ungleiche Abstandsstatistik für jedes Atom.

Der letzte Fall ist bei der hochdispersen Kohle und den festen amorphen Stoffen verwirklicht.

I. Einleitung

Bei Strukturuntersuchungen nichtkristalliner Stoffe ist eine genaue Kenntnis der Intensitätskurve notwendig. Zur Prüfung des gewählten Struktur-Modells werden nach DEBYE u. Mitarb. [1], [2], [3] die experimentellen und berechneten Streukurven miteinander verglichen (trial and error). Man kann aber auch nach DEBYE-MENKE [4] und ZERNIKE-PRINS [5] durch Fourier-Analyse der experimentellen Streukurve zur Atomverteilungskurve übergehen; sie liefert diskrete Abstands- und Atomzahlen-Werte. Mit diesen Daten läßt sich gegebenenfalls bei Anlehnung an die zugehörige Gitter-Struktur ein Modell für den untersuchten festen amorphen Körper ableiten. Für dieses Struktur-Modell kann man nach RICHTER, BREITLING und HERRE [6] die Atomverteilungskurve berechnen, um sie mit der experimentellen zu vergleichen. Die Berechnung der Atomverteilungskurve sei für einige charakteristische Struktur-Modelle durchgeführt. Man geht dabei von der Zernike-Prins- [5] und Debye-Menkeschen [4] Gleichung für die kohärente Streuintensität von N -Atomen

$$I(s) = Nf^2 + Nf^2 \int_0^{\infty} 4\pi r^2 [\varrho(r) - \varrho_0] \frac{\sin sr}{sr} dr \quad (1a)$$

und von der Warrenschen [7] Gleichung für die radiale Atomverteilung

$$4\pi r^2 \varrho(r) = 4\pi r^2 \varrho_0 + \frac{2r}{\pi} \int_0^\infty \frac{I(s) - N\bar{f}^2}{N\bar{f}^2} \cdot s \cdot \sin rs \, ds \quad (1b)$$

aus. Beide Gleichungen sind durch den Fourierschen Integralsatz (Fourier-Transformation) miteinander verknüpft. In diesen Gleichungen bedeuten

N = Anzahl der streuenden Atome,

\bar{f}^2 = Atomformfaktor,

r = Abstand vom Ausgangsatom,

$s = 4\pi \frac{\sin \theta}{\lambda}$,

$\varrho(r)$ = Atomdichte = Zahl der Atome pro \AA^3 und

ϱ_0 = Atomdichte bei gleichmäßiger Massenverteilung.

Gl. (1a) erhält man aus der allgemeinen Streuformel durch die folgenden Vereinfachungen:

1. Gitterstörungen 1. Art werden vernachlässigt, d.h. es ist $\bar{f}^2 = \overline{f^2}$ oder mit anderen Worten, es wird nur eine Atomsorte im Streukörper vorausgesetzt. Im Falle mehrerer Atomarten kann man nach WARREN [7] einen mittleren Streufaktor des Elektrons einführen, sofern sich die Atomformfaktoren der einzelnen Atome nicht allzusehr in ihrer Form unterscheiden.

2. Von der Kleinwinkelstreuung wird abgesehen.

3. Radialsymmetrie wird angenommen, so daß eine einfache Mittelung der Atomlagen über den ganzen Raum möglich ist.

Im folgenden werden die beiden Gln. (1a) und (1b) für die wichtigsten Fälle diskutiert. Dabei wird vorausgesetzt, daß die Atomlagen durch Punktfunktionen beschrieben werden können, d.h. die Atome streuen nur wenig um ihre Lage.

II. Gase

a) Zweiatomiges Gas

Die Atomverteilung eines zweiatomigen Gases ist charakterisiert durch

1. den Abstand a der beiden Atome im Einzelmolekül und

2. die regellose Lagerung aller übrigen Moleküle. Jedes Atom hat dieselbe Abstandsstatistik, wie sie in den Fig. 1a und 1b wiedergegeben ist und durch die Gleichung

$$\varrho(r) = \varrho' \delta(r - a) + \varrho_0 S(r, R) \quad \text{mit} \quad a < R \quad (2a)$$

bzw.

$$4\pi r^2 \varrho(r) = 4\pi r^2 \varrho' \delta(r - a) + 4\pi r^2 \varrho_0 S(r, R) \quad (2b)$$

beschrieben wird. In diesen Gleichungen bedeuten δ die „Diracsche Funktion“ mit

$$\delta(r-a) \begin{cases} = 0 & \text{für } r \neq a \\ \neq 0 & \text{für } r = a \end{cases} \quad \text{und} \quad \int_0^{\infty} \delta(r-a) dr = 1,$$

sowie $S(r, R)$ eine „Stufenfunktion“, für sie gilt

$$S(r, R) \begin{cases} = 0 & \text{für } r < R \\ = 1 & \text{für } r \geq R. \end{cases}$$

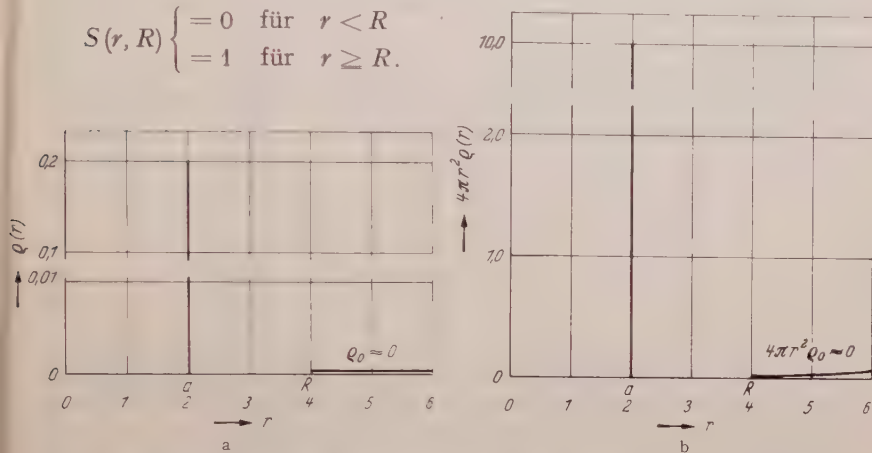


Fig. 1 a u. b. a Atomdichte $\rho(r)$ eines zweiatomigen Gases mit $a = 2,0 \text{ \AA}$ und $R = 4,0 \text{ \AA}$.
b Radiale Atomverteilung $4\pi r^2 \rho(r)$ eines zweiatomigen Gases mit $a = 2,0 \text{ \AA}$ und $R = 4,0 \text{ \AA}$

Setzt man Gl. (2a) in (1a) ein, so erhält man für die kohärent gestreute Intensität den Ausdruck

$$I(s) = N f^2 \left(1 + \int_0^{\infty} 4\pi r^2 [\rho' \delta(r-a) + \rho_0 S - \rho_0] \frac{\sin sr}{sr} dr \right)$$

oder mit

$$\int_0^{\infty} 4\pi r^2 \rho' \delta(r-a) dr = \int_0^R 4\pi r^2 \rho' \delta(r-a) dr = n = 1$$

$$I(s) = N f^2 + N f^2 \left\{ 1 \cdot \frac{\sin as}{as} - \int_0^R 4\pi r^2 \rho_0 \frac{\sin sr}{sr} dr \right\}$$

die Warrensche [9] Form

$$I(s) = N f^2 + N f^2 \left\{ \frac{\sin as}{as} - \frac{4\pi R \rho_0}{s^2} \left(\frac{\sin sR}{sR} - \cos sR \right) \right\}. \quad (3)$$

Der zweite Summand in der geschweiften Klammer hat bei $\rho_0 > 0$ den steilen Abfall der Intensitätskurve für $\frac{\sin \vartheta}{\lambda} \rightarrow 0$ zur Folge.

Bei den Gasen ist die kontinuierliche oder gleichmäßige Atomdichte ρ_0 sehr viel kleiner als 1, so daß man den zweiten Term in der geschweiften

Klammer vernachlässigen kann. Aus Gl. (3) folgt dann

$$I(s) = Nf^2 \left(1 + \frac{\sin as}{as} \right). \quad (4)$$

Diese Gleichung wurde zuerst von DEBYE u. Mitarb. [1], [2], [3] angegeben und von ihnen bestätigt. Aus Gl. (4) ergibt sich, daß $I(s)$ für große s -Werte gegen Nf^2 geht.

Im allgemeinen ist $I(s)$ aus Streuversuchen bekannt, so daß man nach Gl. (1b) die Atomverteilung bestimmen kann. Dabei ist zu beachten,

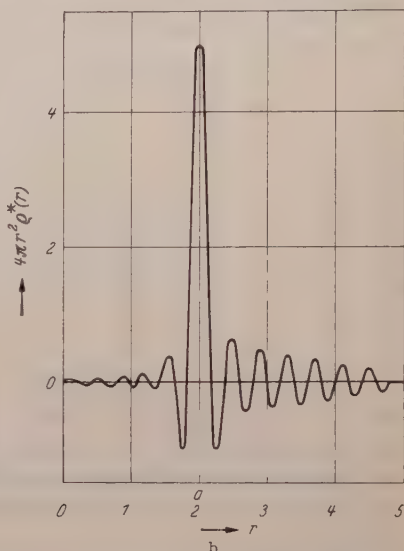
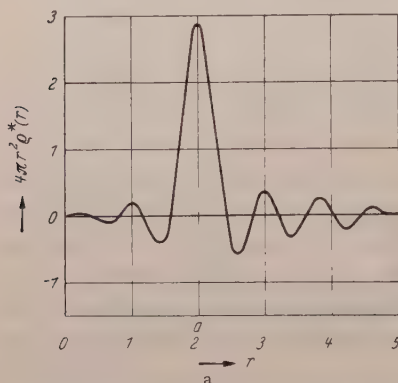


Fig. 2 a u. b. a Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 1 a, b mit $s_0 = 8,0 \text{ \AA}^{-1}$.
b Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 1 a, b mit $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$

daß das Integral entsprechend dem erfaßten Winkelbereich von $s=0$ bis $s=s_0 = 4\pi \frac{\sin \vartheta_{\max}}{\lambda}$ (Abbruch-Effekt) zu erstrecken ist. Analog hierzu kann man für ein vorgegebenes Struktur-Modell die Streukurve nach Gl. (1a) berechnen, um aus ihr nach Gl. (1b) und bei Integration von $s=0$ bis $s=s_0$ die Atomverteilung durch Rechnung zu erhalten. Im Falle des zweiatomigen Gases ergibt die Substitution von Gl. (4) in (1b)

$$4\pi r^2 \rho^*(r) = 4\pi r^2 \rho_0 + \frac{2r}{\pi} \int_0^{s_0} \frac{1}{a} \sin as \sin rs ds. \quad (5)$$

Hierin bedeutet $\rho^*(r)$ die durch den Abbrucheffect veränderte Atomverteilung. Das Integral in Gl. (5) läßt sich geschlossen darstellen, so daß gilt

$$4\pi r^2 \rho^*(r) = 4\pi r^2 \rho_0 + \frac{s_0}{\pi} \cdot \frac{r}{a} \left[\frac{\sin s_0(a-r)}{s_0(a-r)} - \frac{\sin s_0(a+r)}{s_0(a+r)} \right]$$

und wegen $\rho_0 \ll 1$

$$4\pi r^2 \rho^*(r) = \frac{s_0}{\pi} \cdot \frac{r}{a} \cdot \left[\frac{\sin s_0(a-r)}{s_0(a-r)} - \frac{\sin s_0(a+r)}{s_0(a+r)} \right]. \quad (6)$$

Damit ist es möglich, die radiale Atomverteilung auch durch Rechnung zu erhalten.

In Fig. 2a ist Gl. (6) für $a = 2,0 \text{ \AA}$ und $s_0 = 8,0 \text{ \AA}^{-1}$ dargestellt. An Stelle der Deltafunktion ergibt sich eine Funktion mit einem Hauptmaximum und sehr vielen sich beiderseits anschließenden Nebenmaxima. Fig. 2b zeigt dieselbe Darstellung für die Integrationslänge $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$. Diese Kurve unterscheidet sich von der in Fig. 2a durch die Höhe und Breite der Maxima. Danach ist die Breite der Maxima eine Folge der Integrationslänge und nicht die alleinige Folge von Lage-schwankungen der Atome oder mit anderen Worten: der Abbruch-Effekt täuscht eine Lagestreuung der Atome vor. Als Breite eines Maximums sei die Breite bezeichnet, die es auf der Abszissenachse besitzt. Man erhält sie aus

$$\left[\frac{\sin s_0(a-r)}{s_0(a-r)} - \frac{\sin s_0(a+r)}{s_0(a+r)} \right] = 0$$

zu

$$\Delta \approx \frac{2\pi}{s_0}. \quad (7)$$

Nach Fig. 2a ist bei Cu-Strahlung $\Delta = 0,85 \text{ \AA}$ und nach Fig. 2b bei Mo-Strahlung $\Delta = 0,40 \text{ \AA}$. Diese Maximabreiten werden in Übereinstimmung mit der Berechnung bei den experimentellen Atomverteilungskurven der festen amorphen Stoffe und selbst der Flüssigkeiten erhalten.

Für den Flächeninhalt unter dem Hauptmaximum bzw. für die Atomzahl ergibt sich nach RICHTER, BREITLING und HERRE [6]

$$n = \int_{-1,9}^{+1,9} \frac{s_0}{\pi} \cdot \frac{r}{a} \left[\frac{\sin s_0(a-r)}{s_0(a-r)} - \frac{\sin s_0(a+r)}{s_0(a+r)} \right] dr \approx 1,18$$

an Stelle von $n = 1,0$; d.h. bei einem einzigen Atomabstand wird die Atomzahl durch das Hauptmaximum um 18% zu groß geliefert.

b) Mehratomiges Gas

Geht man zum mehratomigen Gas über, d.h. zu einem Gas, dessen Moleküle aus mehreren Atomen bestehen, so ändert sich die Atomverteilung. Jetzt hat nicht mehr jedes Atom die gleiche Abstandsstatistik, jedoch läßt sich eine mittlere Statistik angeben*. Bezeichnet man mit a_i die Atomabstände vom Ausgangsatom, dann gilt

$$\varrho(r) = \sum \varrho'_i \delta(r - a_i) + \varrho_0 S(r, R) \quad (8a)$$

bzw.

$$4\pi r^2 \varrho(r) = 4\pi r^2 \sum \varrho'_i \delta(r - a_i) + 4\pi r^2 \varrho_0 S(r, R). \quad (8b)$$

* Mittlere Abstandsstatistik = Anzahl eines bestimmten Abstandes, von jedem Atom aus gemessen, dividiert durch die Gesamtzahl der betrachteten Atome.

Der Übergang zur Intensitätsverteilung und von ihr zur Atomverteilung erfolgt wie oben beschrieben. Man hat dabei $\varrho' \delta(r-a)$ durch $\sum \varrho'_i \delta(r-a_i)$ zu ersetzen. Für die gestreute Intensität ergibt sich

$$I(s) = Nf^2 + Nf^2 \left\{ \sum n_i \frac{\sin a_i s}{a_i s} - \frac{4\pi R \varrho_0}{s^2} \left(\frac{\sin s R}{s R} - \cos s R \right) \right\}. \quad (9)$$

Ist wieder $\varrho_0 \ll 1$, so folgt

$$I(s) = Nf^2 \left(1 + \sum n_i \frac{\sin a_i s}{a_i s} \right) \quad (10)$$

und für die Atomverteilung

$$4\pi r^2 \varrho^*(r) = \frac{s_0}{\pi} \sum n_i \frac{r}{a_i} \left[\frac{\sin s_0(a_i - r)}{s_0(a_i - r)} - \frac{\sin s_0(a_i + r)}{s_0(a_i + r)} \right]. \quad (11)$$

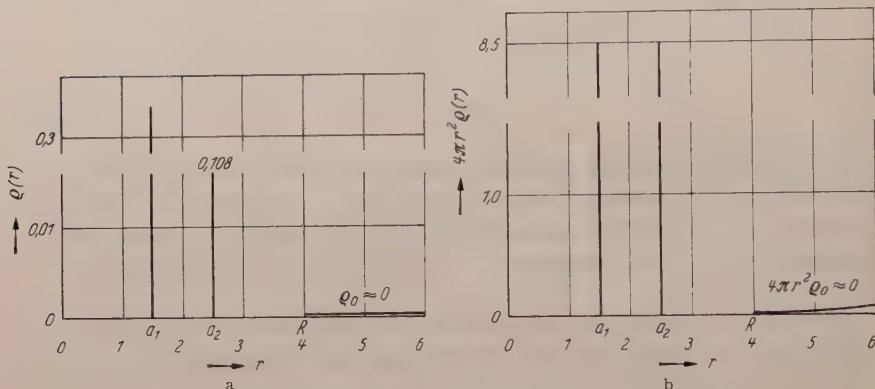


Fig. 3 a u. b. a Atomdichte $\varrho(r)$ mit $a_1 = 1,5 \text{ \AA}$, $a_2 = 2,5 \text{ \AA}$ und $R = 4,0 \text{ \AA}$. b Radiale Atomverteilung $4\pi r^2 \varrho(r)$ mit $a_1 = 1,5 \text{ \AA}$, $a_2 = 2,5 \text{ \AA}$ und $R = 4,0 \text{ \AA}$

Die Gln. (9) bzw. (10) und (11) entsprechen den Gln. (3) bzw. (4) und (6); sie stellen Streuintensität und radiale Atomverteilung im Falle eines mehratomigen Gases dar.

Um das Zusammenspiel zweier Interferenzglieder $\frac{\sin a_i s}{a_i s}$ zu verfolgen, ist rein formal ein weiteres Interferenzglied zum obigen Intensitätsausdruck der Gl. (4) hinzugefügt. Im betrachteten Modell* besitzen die Atome bei gleicher Anzahl von Nachbarn die Abstände $a_1 = 1,5 \text{ \AA}$ und $a_2 = 2,5 \text{ \AA}$ und die Atomverteilung der Fig. 3a bzw. b, d.h. von einem $r \geq R$ liegt wieder wie in Fig. 1a bzw. b der Zustand der regellosen Atomverteilung vor. Die für den betrachteten Fall nach Gl. (11) berechnete Atomverteilung ist in Fig. 4 dargestellt, und zwar in Fig. 4a für die Integrationslänge $s_0 = 10 \text{ \AA}^{-1}$ und in Fig. 4b für $s_0 = 16 \text{ \AA}^{-1}$. Man erkennt wieder die zunehmende Schärfe der Maxima mit wach

* Ein Molekül dieser Art ist in der Natur nicht anzutreffen, doch ist die Annahme zweier gleichwertiger Atomabstände besonders anschaulich.

sendem s_0 und zudem in Fig. 4b das Auftreten eines ausgeprägten Nebenmaximums zwischen den beiden Hauptmaxima. Das gleichzeitige Vorhandensein von Nebenmaxima erschwert die Diskussion der Atomverteilungskurven ganz beträchtlich. Bei Vorliegen mehrerer Atomabstände beeinflussen die Nebenmaxima in unübersichtlicher Weise die Atomzahlen unter den Hauptmaxima, doch ist Gl. (7) zur Festlegung der Breite Δ im Bereiche des ersten Hauptmaximums nach wie vor anwendbar.

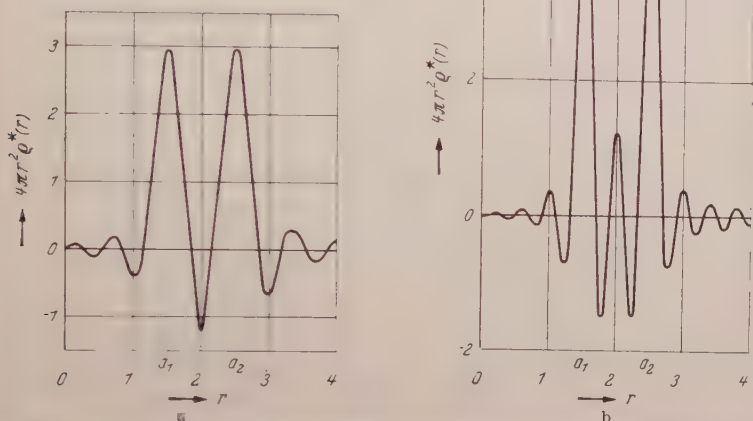


Fig. 4 a u. b. a Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 3 a, b mit $s_0 = 10,0 \text{ \AA}^{-1}$
 b Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 3 a, b mit $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$

III. Kristalline und nichtkristalline Stoffe

Beim Festkörper und bei den Flüssigkeiten ist ρ_0 nicht mehr vernachlässigbar klein. Damit ändern sich die Gleichungen für die gestreute Intensität und für die Atomverteilung.

a) Gleiche Abstandsstatistik für alle Atome

Nach Fig. 8 hat jedes Atom des als unendlich ausgedehnt angenommenen Körpers dieselbe Umgebung (Atomanordnung) und damit die gleiche Abstandsstatistik. Weiter ist angenommen*, daß für $r \geq R$ die Atomverteilung in die gleichmäßige übergeht. In diesem Falle ist nach Fig. 5a bzw. in Anlehnung an das mehratomige Gas die radiale Atomdichte aufzuspalten in

$$\rho(r) = \sum \rho'_i \delta(r - a_i) + \rho_0 S(r, R) \quad (12a)$$

bzw.

$$4\pi r^2 \rho(r) = 4\pi r^2 \sum \rho'_i \delta(r - a_i) + 4\pi r^2 \rho_0 S(r, R) \quad (12b)$$

* Dieses Modell wählte WARREN [9] zur Berechnung der Streukurve von glasigem SiO_2 .

mit a_i als diskrete Atomabstände. Führt man Gl. (12a) in (1a) ein, so ergibt sich für die gestreute Intensität

$$I(s) = Nf^2 + Nf^2 \left\{ \sum n_i \frac{\sin a_i s}{a_i s} - \frac{4\pi R \varrho_0}{s^2} \left(\frac{\sin sR}{sR} - \cos sR \right) \right\} \quad (13)$$

und für die Atomverteilung

$$4\pi r^2 \varrho^*(r) = 4\pi r^2 \varrho_0 + \frac{s_0}{\pi} \sum n_i \frac{r}{a_i} \left[\frac{\sin s_0(a_i - r)}{s_0(a_i - r)} - \frac{\sin s_0(a_i + r)}{s_0(a_i + r)} \right] - \left[-4\pi r^2 \varrho_0 \left[-\frac{2}{\pi} \sin s_0 R \frac{\sin s_0 r}{s_0 r} + \frac{1}{\pi} (Si s_0(R+r) - Si s_0(r-R)) \right] \right] \quad (14)$$

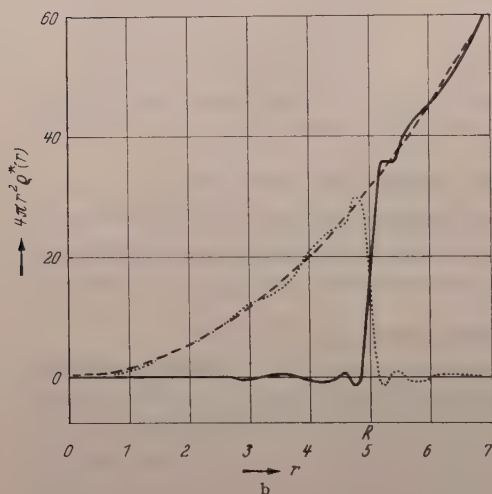
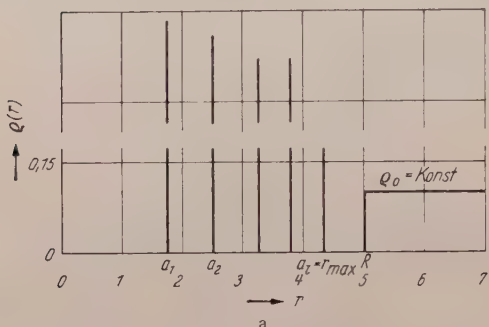


Fig. 5a u. b. a Atomdichte $\varrho(r)$ eines Festkörpers mit $a_i = r_{\max} = 4,3 \text{ \AA}$ und $R = 5,0 \text{ \AA}$ bei gleicher Abstandsstatistik für jedes Atom. b Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 5a mit $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$, aber ohne Berücksichtigung des diskreten Anteils (ausgezogene Kurve)

Diese Gleichung enthält zwei charakteristische Ausdrücke und zwar

1. das zweite Glied und damit die Summe über alle i , welche die Abstandsstatistik für $r < R$ liefert. Hier hat jedes Atom im Abstande a_i die gleiche Anzahl n_i von Nachbarn und

2. das dritte Glied, das die gleichmäßige Atomverteilung $4\pi r^2 \varrho_0$ modifiziert

Dieses Glied wird bei Ausdehnung der Integration ins Unendliche ($s_0 = \infty$) Null und zwar für $r > R$ und gleich $-4\pi r^2 \varrho_0$ für $r < R$. Das erste und dritte Glied ergeben zusammen gerade den Verlauf der modifizierten gleichmäßigen Atomverteilung, der bei der Wahl des Modells bzw. der Stufenfunktion von vornherein der Rechnung zugrunde gelegt wurde. Die Summe über i ist mit der entsprechenden Summation im Ausdruck für die radiale Atomdichte mehratomiger Gase identisch [vgl. Gl. (11)

und die Fig. 4a, b]. Es genügt daher, die beiden Restglieder (1. und 3. Glied) zu diskutieren; sie sind in Fig. 5b für $R = 5,0 \text{ \AA}$ und $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$

dargestellt. Dabei bedeutet die gestrichelte Kurve die gleichmäßige Atomverteilung (1. Glied) und die punktierte den Beitrag des dritten Gliedes. Man sieht, daß für $r < R$ der Restausdruck Null wird — hier wird der Verlauf der $4\pi r^2 \varrho^*(r)$ -Kurve allein von der Summe über i festgelegt — und daß er in der Nähe von $r \approx R$ stark ansteigt, um für $r > R$ bei schwachen Oszillationen in die Kurve der gleichmäßigen Atomverteilung einzupendeln. In diesem Bereiche zeigt auch der Summenausdruck vernachlässigbare Nebenoszillationen.

Für den Fall eines ausgedehnten Raumgitters geht die Bereichsgröße $R^* \rightarrow \infty$. Jetzt wird der Restausdruck (1. und 3. Glied) in Gl. (14) Null**, d.h. der Verlauf der $4\pi r^2 \varrho^*(r)$ -Kurve wird allein von der diskreten Atomanordnung, also von der Summe über i bestimmt.

b) Ungleiche Abstandsstatistik für alle Atome

Bei den Untersuchungen fester amorpher Stoffe und der Gläser hat es sich gezeigt, daß die nach Gl. (14) berechnete Atomverteilung nicht mit der experimentellen übereinstimmt. Man erhält hier meistens eine Atomverteilung, wie sie im Falle der hochdispersen Kohle in Fig. 6 durch die ausgezogene Kurve dargestellt wird. Die gestrichelte Kurve gibt dagegen die nach Gl. (14) berechnete Atomverteilung wieder; ihre Oszillationen erfolgen für $r < R$ um die r -Achse, sie liegen also durchweg zu tief.

Wie hat man die Berechnung mit dem Experiment in Einklang zu bringen?

Die in IIIa verwendete Abstandsstatistik ist für jedes Atom dieselbe, d.h. um jedes Atom des betrachteten Körpers ist die gleiche Atomgruppierung vorhanden. Nimmt man dagegen an, daß der betrachtete Körper aus geordneten Bereichen besteht, die wie bei der hochdispersen Kohle von anderen diskreten Teilchen regellos umgeben sind (vgl.

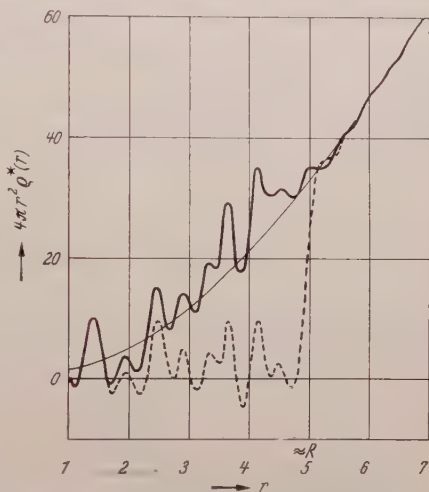


Fig. 6. Experimentelle und nach Gl. (14) berechnete (---) Atomverteilung von hochdispersen Kohle (Teilchengröße: $R^* \approx 5 \text{ \AA}$)

* Im Falle des Warrenschen [7], [8], [9] Modells mit gleicher Abstandsstatistik für alle Atome ist die Bereichsgröße $R^* = 2r_{\max}$, wobei r_{\max} den größten, noch berücksichtigten Atomabstand im geordneten Bereiche bedeutet. Im neuen Modell mit ungleicher Abstandsstatistik ist dagegen die Bereichsgröße $R^* = r_{\max}$.

** Ausgenommen für kleines $s_0 r$, hier ist in der Nähe des Nullpunktes noch eine geringe Oszillation vorhanden.

Fig. 9a), oder an die sich wie bei den festen amorphen Stoffen und den Gläsern ungeordnete Übergangsgebiete anschließen (vgl. Fig. 9b), so ändert sich die Abstandsstatistik; denn jedes Atom hat jetzt eine andere Umgebung, je nachdem es in der Mitte oder am Rand des geordneten Bereiches liegt. Die gemittelte Abstandsstatistik, die jetzt wirksam ist,

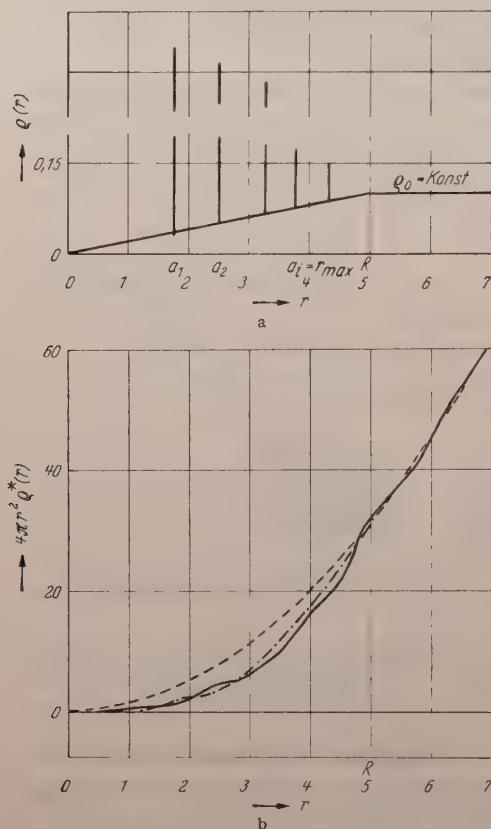


Fig. 7 a u. b. a Atomdichte $\rho(r)$ eines Festkörpers mit $a_4 = r_{\max} = 4,3 \text{ \AA}$ und $R = 5,0 \text{ \AA}$ bei ungleicher Abstandsstatistik für jedes Atom. b Fourier-Umkehr des Intensitätsausdruckes für die Atomverteilung der Fig. 7a mit $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$, aber ohne Berücksichtigung des diskreten Anteils (ausgezogene Kurve), Punkt-Strich-Kurve graphisch nach RICHTER, BREITLING UND HERRE [6], [10] erhalten

und mit n_i^* als Atomzahl im Abstände a_i innerhalb des geordneten Bereiches. Bei Vorliegen von ebenen Schichten ist die Funktion $T(r, R)$ in guter Näherung durch die „Rampenfunktion“

$$T(r, R) = \frac{r}{R}, \quad \text{für } 0 \leq r \leq R$$

setzt sich aus dem Anteil des (geordneten) Ausgangs- und dem des Nachbar-Bereiches zusammen. Eine solche Atom-anordnung ist darzustellen durch:

$$\rho(r) = \sum \rho_i'' \delta(r - a_i) + \left. \begin{aligned} &+ \rho_1 V(r, R). \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Wegen der regellosen Lagerung der geordneten Einzelteilchen bzw. der Existenz von ungeordneten Übergangsgebieten kann man $\rho_1 V(r, R)$ aufspalten in

$$\rho_1 V(r, R) = \left. \begin{aligned} &= \rho_0 T(r, R) + \rho_0 S(r, R) \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

mit

$$T(r, R) = 0, \quad \text{für } r > R.$$

Hierzu tritt wegen der Kontinuität der Raumerfüllung die Nebenbedingung

$$\int_0^R [\sum \rho_i'' \delta(r - a_i) + \rho_0 T(r, R)] \times 4\pi r^2 dr = \frac{4}{3} \pi R^3 \rho_0$$

mit

$$\int_0^R \sum \rho_i'' \delta(r - a_i) 4\pi r^2 dr = \sum n_i^*$$

darstellbar. Die Atomverteilung hat im vorliegenden Falle die Form

$$\varrho(r) = \sum \varrho_i'' \delta(r - a_i) + \varrho_0 \frac{r}{R} [1 - S(r, R)] + \varrho_0 S(r, R) \quad (17a)$$

bzw.

$$\left. \begin{aligned} &4\pi r^2 \varrho(r) \\ &= 4\pi r^2 \sum \varrho_i'' \delta(r - a_i) + 4\pi r^2 \varrho_0 \frac{r}{R} [1 - S(r, R)] + 4\pi r^2 \varrho_0 S(r, R). \end{aligned} \right\} \quad (17b)$$

Diese Verteilung ist in Fig. 7a dargestellt. Setzt man Gl. (17a) in (1a) ein, so erhält man

$$\begin{aligned} I(s) = N f^2 & \left(1 + \int_0^\infty 4\pi r^2 \sum \varrho_i'' \delta(r - a_i) \frac{\sin sr}{sr} dr + \right. \\ & \left. + \int_0^\infty 4\pi r^2 \varrho_0 \frac{r}{R} [1 - S] \frac{\sin sr}{sr} dr + \int_0^\infty 4\pi r^2 \varrho_0 [S - 1] \frac{\sin sr}{sr} dr \right) \end{aligned}$$

oder umgeformt

$$\begin{aligned} I(s) = N f^2 + N f^2 & \left\{ \sum n_i^* \frac{\sin a_i s}{a_i s} + \int_0^R 4\pi r^2 \varrho_0 \frac{r}{R} \cdot \frac{\sin sr}{sr} dr - \right. \\ & \left. - \int_0^R 4\pi r^2 \varrho_0 \frac{\sin sr}{sr} dr \right\}. \end{aligned}$$

Die Integration liefert:

$$\begin{aligned} I(s) = N f^2 + N f^2 & \left\{ \sum n_i^* \frac{\sin a_i s}{a_i s} + \right. \\ & + \frac{4\pi \varrho_0}{sR} \left[-\frac{R^2}{s} \cos sR + \frac{2R}{s^2} \sin sR + \frac{2}{s^3} \cos sR - \frac{2}{s^3} \right] - \\ & \left. - \frac{4\pi R \varrho_0}{s^2} \left[\frac{\sin sR}{sR} - \cos sR \right] \right\}. \end{aligned} \quad (18)$$

Diese Gleichung, die den Gln. (3), (9) und (13) entspricht, unterscheidet sich von den Gln. (9) und (13) durch das Vorhandensein des zweiten Gliedes innerhalb der geschweiften Klammer. Dieses Zusatzglied hat ein noch stärkeres Abklingen der Streukurve für $\frac{\sin \vartheta}{\lambda} \rightarrow 0$ zur Folge. Gl. (18) in (1b) substituiert, ergibt

$$\begin{aligned} 4\pi r^2 \varrho^*(r) = 4\pi r^2 \varrho_0 + \frac{2r}{\pi} & \int_0^\infty \left\{ \sum n_i^* \frac{\sin a_i s}{a_i s} + \right. \\ & + \frac{4\pi \varrho_0}{sR} \left[-\frac{R^2}{s} \cos sR + \frac{2R}{s^2} \sin sR + \frac{2}{s^3} \cos sR - \frac{2}{s^3} \right] - \\ & \left. - \frac{4\pi R \varrho_0}{s^2} \left[\frac{\sin sR}{sR} - \cos sR \right] \right\} s \cdot \sin rs ds \end{aligned}$$

und die Integration liefert

$$4\pi r^2 \varrho^*(r) = 4\pi r^2 \varrho_0 + \frac{s_0}{\pi} \sum n_i \frac{r}{a_i} \left[\frac{\sin s_0(a_i - r)}{s_0(a_i - r)} - \frac{\sin s_0(a_i + r)}{s_0(a_i + r)} \right] - \left. \begin{aligned} & - 4\pi r^2 \varrho_0 \left[-\frac{2}{\pi} \sin s_0 R \frac{\sin s_0 r}{s_0 r} + \frac{1}{\pi} (Si s_0(R+r) - Si s_0(r-R)) \right] + \\ & + 4\pi r^2 \varrho_0 \left\{ -\frac{2}{\pi} \cdot \frac{\sin s_0 r}{s_0 r} \left[\sin s_0 R + \frac{\cos s_0 R - 1}{s_0 R} \right] - \frac{2}{\pi} \cos s_0 r \times \right. \\ & \times \left. \left[\frac{\cos s_0 R - 1}{s_0 R} \right] - \frac{r}{\pi R} [Si s_0(R+r) - Si s_0(R-r) - 2 Si s_0 r] \right\} \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Gl. (19) besteht aus vier Gliedern, sie entspricht den Gln. (6), (11) und (14), sie unterscheidet sich von Gl. (14) durch das Auftreten des vierten Gliedes (geschweifte Klammer). Wieder stellt das zweite Glied die

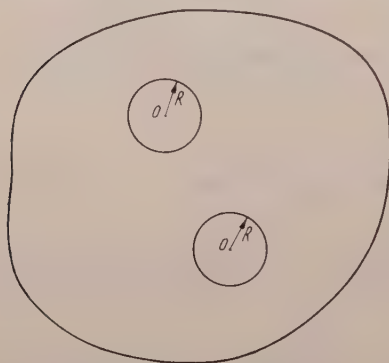


Fig. 8. Struktur-Modell bei gleicher Abstandstatistik für jedes Atom

diskrete Atomverteilung des geordneten Bereiches dar, das erste und dritte Glied ergeben auch hier die abgeänderte (modifizierte) gleichmäßige Atomverteilung, das Restglied (4. Glied) bestimmt dagegen die „regellose“ Atomverteilung, die nach den Fig. 9a, b durch die regellose Lagerung diskreter kleinster Teilchen oder durch das Vorhandensein kleinster geordneter Bereiche in steter Verbindung mit ungeordneten Übergangsgebieten zustande kommt. Das Restglied mit den Parametern s_0 und R legt also den Bei-

trag der Rampenfunktion $T(r, R)$ zur Atomdichte fest. Für das Raumgitter mit $R = \infty$ werden auch in Gl. (19) alle Glieder bis auf das zweite mit seiner diskreten Atomanordnung Null [vgl. Gl. (14)]. In Fig. 7b gibt die nach Gl. (19) für $R = 5,0 \text{ \AA}$ und für $s_0 = 16,0 \text{ \AA}^{-1}$ berechnete (ausgezogene) Kurve den Anteil der modifizierten gleichmäßigen Atomverteilung, vermehrt um den Beitrag des vierten Gliedes wieder. Dieser Beitrag wurde bei den früheren Untersuchungen von RICHTER, BREITLING und HERRE [6], [10] an hochdisperser Kohle, glasigem B_2O_3 u.a. graphisch, und zwar durch sukzessive Annäherung mittels $\frac{n_i - n_i^*}{n_i} \cdot 4\pi r^2 \varrho_0 \Delta r$,

erhalten (vgl. Fig. 7b, Strich-Punkt-Kurve, berechnet für die hochdisperse Kohle mit $R \approx 5,0 \text{ \AA}$), und der Atomdichte in Gl. (14) hinzugefügt. Beide Kurven zeigen trotz der willkürlichen Wahl der Rampenfunktion einen weitgehend übereinstimmenden Verlauf, besonders für $r < 3,0 \text{ \AA}$ und münden für $r \geq R$ in die Kurve der gleichmäßigen Atomverteilung ein.

Die Einführung der „regellosen“ Atomverteilung erwies sich als notwendig, um Übereinstimmung zwischen berechneter und experimenteller Atomverteilung zu erreichen (vgl. Fig. 6). Im Falle der hochdispersen Kohle verlangt dieser Anteil zur Atomdichte das regellose Nebeneinander diskreter kleinster Teilchen (vgl. Fig. 9a) und im Falle der festen amorphen Stoffe und der Gläser das Vorhandensein kleinster geordneter Bereiche in steter Verknüpfung mit ungeordneten Übergangsgebieten (vgl. Fig. 9b). Die Existenz der regellosen Atomverteilung erlaubt, eindeutig zugunsten der Fig. 9b mit ihrer ungleichen Abstandsstatistik

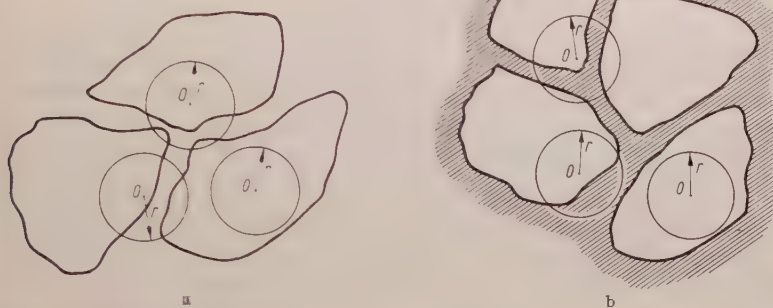


Fig. 9a u. b. Struktur-Modelle bei ungleicher Abstandsstatistik für jedes Atom; als Beispiele: a Hochdisperse Kohle, b fester amorpher Körper (Umrandete Bereiche = geordnete Bezirke, schraffierter Bereich = ungeordnetes Übergangsgebiet)

für alle Atome als Struktur-Modell des festen amorphen Körpers zu entscheiden. Sind die geordneten Bereiche praktisch unendlich ausge dehnt, d.h. geht $R \rightarrow \infty$, dann wird die radiale Atomverteilung lediglich durch den Summenausdruck von Gl. (19) festgelegt.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei für die Förderung dieser Arbeiten bestens gedankt.

Literatur

- [1] DEBYE, P.: Ann. Phys. **46**, 809 (1915). — [2] DEBYE, P., L. BEWILOGUA u. W. F. EHRHARDT: Phys. Z. **30**, 84 (1929). — [3] GRINTEN, W. VAN DER: Phys. Z. **34**, 609 (1933). — [4] DEBYE, P., u. H. MENKE: Ergebn. techn. Röntgenkunde **2**, 16 (1931). — [5] ZERNIKE, F., u. J. A. PRINS: Z. Physik **41**, 184 (1927). — [6] RICHTER, H., G. BREITLING u. F. HERRE: Naturwiss. **42**, 151 (1955). — Z. angew. Phys. **8**, 433 (1956). — [7] WARREN, B. E., and N. S. GINGRICH: Phys. Rev. **46**, 368 (1934). — [8] WARREN, B. E., H. KRUTTER and O. MORNINGSTAR: J. Amer. Ceram. Soc. **19**, 202 (1936). — [9] WARREN, B. E.: Z. Kristallogr. **86**, 349 (1933). — J. Amer. Ceram. Soc. **17**, 249 (1934). — Phys. Rev. **45**, 657 (1934). — [10] HERRE, F., u. H. RICHTER: Z. Naturforsch. **12a**, 545 (1957).

Aus dem Forschungsinstitut St. Louis

Physikalische Vorgänge bei elektrischen Drahtexplosionen

Von

ERWIN DAVID *

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 1. August 1957)

Ein typisches Beispiel einer mittelstarken Drahtexplosion wird zwecks Klarstellung der verschiedenen, dabei nacheinander ablaufenden physikalischen Vorgänge durchgerechnet. — Der Strom von einigen kA heizt in reichlich 10^{-7} sec das Material des Drahtes auf fast 10000° auf. Trägheitskräfte, anfangs unterstützt durch magnetische Kräfte, halten es dabei nahezu an Ort und Stelle. Der Druck steigt in der Achse auf etliche tausend Atm. Sie führen zur explosiven Expansion. In deren Beginn wird das Material als komprimiertes Gas nichtleitend und unterbricht den Strom. Der expandierende Metaldampf schiebt eine Luftstoßwelle (Knallwelle) vor sich her. In einigen μ s verdünnt er sich soweit, daß in ihm eine normale Gasentladung zündet.

1. Einleitung

Angeregt wurden die nachfolgenden Überlegungen durch die experimentellen Untersuchungen von WERNER MÜLLER¹. Wesentliche Fragestellung ist: Welche Extremzustände der Materie treten bei einer Drahtexplosion auf? Demzufolge liegt der Schwerpunkt der Betrachtungen bei dem mit Kerr-Zellenaufnahmen kaum erfaßbaren Anfang des Vorgangs.

Oszillographisch sollten Strom-, Spannungs- und Helligkeitsverlauf während dieses Abschnitts meßbar sein. Verfasser hat aber solche Beobachtungen in einwandfreier und vollständiger Form noch nicht veröffentlicht gefunden und kann deshalb einstweilen noch nicht quantitativ darauf basieren.

Ersatzweise wurde ein Beispiel rein theoretisch durchgerechnet. Die Daten des Beispiels entsprechen im Mittel denen der Müllerschen Versuche:

Kupferdraht in normaler Luft, Länge 10 cm, Durchmesser 0,05 mm, $\left. \begin{array}{l} \text{Kapazität } 0,025 \mu\text{F, Spannung } 40 \text{ kV, Selbstinduktion } 1 \mu\text{Hy.} \end{array} \right\} \quad (1)$

Ausgehend von diesem Beispiel kann man zum mindesten qualitativ auf den Verlauf bei anderen Versuchsdaten schließen.

* Mitarbeiter des Service Technique de l'Armée Française; Anschrift: Weil (Rhein), Elsässer-Str. 10a.

¹ MÜLLER, WERNER: Z. Physik **149**, 397 (1957).

Der erste Abschnitt des Vorgangs der Drahtexplosion werde in folgender Weise unterteilt:

- Abschnitt 1 α : Aufheizen bis Schmelzpunkt,
- 1 β : Schmelzen,
- 1 γ : Aufheizen des flüssigen Metalls,
- 1 δ : Weiteres Aufheizen, Extremzustand, Expansionsbeginn,
- 1 ε : Unterbrechen des Stromes,
- Abschnitt 2: Expansion.

2. Hauptvorgänge

Abschnitt 1 α , Aufheizen bis Schmelzpunkt. Den Funken, der den Stromkreis schließt, können wir als idealen Schalter betrachten. Der Anlauf des Funkenstroms bis zu einigen 10 Amp ist für unseren Draht wirkungslos. Das Aufheizen zum fast widerstandslosen Funkenkanal geht in 10^{-8} sec relativ schnell. Des weiteren bleibt die Spannung am Funken klein gegenüber den interessierenden Spannungen.

Der Draht hat kalt $1,0 \Omega$, am Schmelzpunkt $5,9 \Omega$ Widerstand. Der ohmsche Spannungsabfall daran steigt beim Aufheizen von 0 auf 17,7 kV, da der Strom auf recht genau 3 kA ansteigt. Das Mittel des Spannungsabfalls liegt für Abschnitt 1 α unter 5 kV, da der Abfall erst gegen Schluß rasch ansteigt. Ebenso wird das Absinken der Kondensatorspannung durch die Entladung erst gegen Schluß wesentlich. So bleiben von den 40 kV anfänglicher Kondensatorspannung etwa 34 kV, die an $1 \mu\text{Hy}$ Selbstinduktion den Strom im Mittel mit $3,4 \cdot 10^{10}$ Amp/sec ansteigen lassen. Auch für den Draht seien mittlere Daten genommen: Widerstandsanstieg 4,5 Promille/Grad, spezifische Wärme 6,5 cal/Mol Grad ergibt $7,5 \cdot 10^{-4}$ Ws/Grad für die Drahtmasse von $1,74 \cdot 10^{-3}$ g = $2,75 \cdot 10^{-5}$ Mol.

Damit ist mit ausreichender Genauigkeit die Temperatur T des noch festen Drahtes nach der Zeit t zu erhalten zu

$$T - 293^\circ = 222^\circ (e^{2,5 \cdot 10^{11} t} - 1). \quad (2)$$

Mit einem anfangs langsamen, zum Schluß raschen Temperaturanstieg wird der Schmelzpunkt bei 1357°K in $8,9 \cdot 10^{-8}$ sec erreicht. Im einzelnen ist der Verlauf der interessierenden Größen aus den Fig. 1—3 zu ersehen.

Abschnitt 1 β , Schmelzen. Das Schmelzen erfordert $3,1 \cdot 10^3$ cal/Mol, d.h. 0,36 Ws für den Draht. Der Widerstand steigt dabei von 5,9 auf 12,3 Ω . Man überschlägt leicht, daß das Schmelzen bei 3,0 kA in etwa $0,45 \cdot 10^{-8}$ sec erfolgt, wobei der Strom nur noch um den vernachlässigbaren Betrag von 30 Amp ansteigt.

Mit Überschreiten der Kondensatorspannung durch den ohmschen Spannungsabfall beginnt jetzt der Strom zu sinken. Die bisher vom Kondensator ins Magnetfeld der Selbstinduktion übergegangene Energie wird in der Folge mit zum Aufheizen verbraucht.

Abschnitt 1 γ , Aufheizen des flüssigen Metalls. Die Trägheit hält den flüssig gewordenen Draht über die kurzen in Betracht kommenden Zeiten

von wenigen 10^{-8} sec starr in seiner Form. Des weiteren wirkt das Magnetfeld zusammenhaltend. Die 3,0 kA ergeben

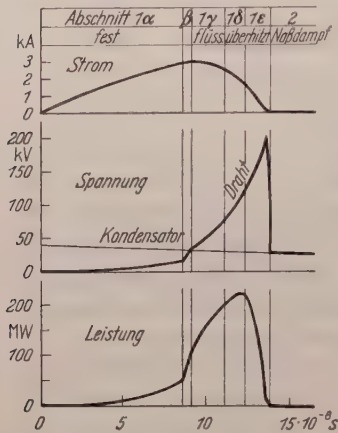


Fig. 1

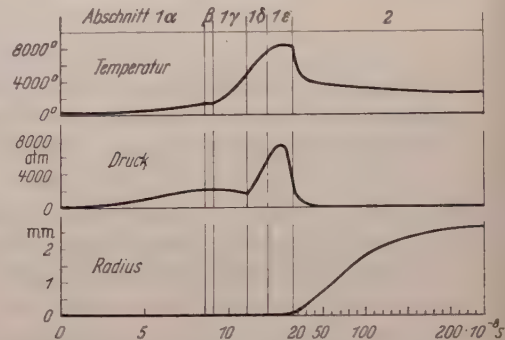


Fig. 2

Fig. 1. Zeitlicher Verlauf von Strom, ohmschen Spannungsabfall am Draht sowie Kondensatorspannung und im Draht aufgenommener Heizleistung

Fig. 2. Temperatur und Druck in der Drahtachse sowie Radius des Kupferdampfzylinders. Zeitmaßstab in Abschnitten 1 und 2 um Faktor 20 verschieden!

an der Drahtoberfläche $H = 1,9 \cdot 10^7$ Amp/m, $B = 24$ Vs/m². Dem entspricht eine Maxwell'sche Spannung von

$$\frac{1}{2}HB = 2,3 \cdot 10^8 \text{ Newton/m}^2 \rightarrow 2300 \text{ Bar}^* \quad (3)$$

Sie verursacht diesen Druck von 2300 b in der Drahtachse. Da das Feld linear gegen die Oberfläche hin ansteigt, HB also quadratisch, fällt der Druck parabolisch gegen die Oberfläche auf den Außendruck ab. 1000 bzw. 100 b beträgt er bei 0,75 bzw. 0,98 des Radius. Dazu gehören Siedepunkte von 5000 bzw. 4400°, wenn man in die Clausius-Clapeyronsche Formel

$$dp/dT = \lambda/T(V_{\text{Dampf}} - V_{\text{Fl}}) \quad (4)$$

die Verdampfungswärme $\lambda = 7,3 \cdot 10^4$ cal/Mol am normalen Siedepunkt 2700° des Kupfers einsetzt.

Auf 4000 bis 5000° wird der flüssige Draht also aufgeheizt, ohne daß mehr passiert, als ein geringfügiges Abdampfen, bzw. Abstäuben von der Oberfläche.

* Im Rahmen der Genauigkeit dieser Arbeit dürfen wir Bar, physikalische und technische Atmosphäre gleichsetzen.

Bei flüssigem Kupfer ist bis 1760° eine Widerstandszunahme pro Grad um $0,37\text{‰}$ des Schmelzpunktwiderstandes beobachtet worden. Extrapolieren wir etwas gewagt diese Zunahme linear bis 5000° , so ergibt sich dort ein Drahtwiderstand von $30\ \Omega$. Aus der in dem so ansteigenden Widerstand freiwerdenden Jouleschen Wärme und den für das Aufheizen etwa erforderlichen 7 cal/Mol Grad , d.h. $8 \cdot 10^{-4}\text{ Ws/Grad}$ für die Drahtmasse folgt:

Die Aufheizzeit des flüssigen Metalls bis 5000° beträgt $2,0 \cdot 10^{-8}\text{ sec}$; wahrenddessen sinkt der Strom auf $2,6\text{ kA}$ ab.

Abschnitt 1δ, Weiteres Aufheizen, Extremzustand, Expansionsbeginn. Bisher war die Expansion des Materials des Drahtes geringfügig. Mit dem weiteren Aufheizen überschreitet jetzt aber der Dampfdruck von außen nach innen fortschreitend stark den magnetischen Druck. Sofort führt das indes durchaus nicht zu einer Dichteabnahme im Innern. Erst durch eine von außen nach innen mit Schallgeschwindigkeit laufende Verdünnungswelle wird die Dichteabnahme eingeleitet. Da die überhitzte Flüssigkeit dem festen Kupfer gegenüber im Gefüge aufgelockert, also viel kompressibler ist, dürfte die Schallgeschwindigkeit bei nur etwa 2 km/sec liegen. Es dauert also ungefähr $1,2 \cdot 10^{-8}\text{ sec}$, bis in der Drahtmitte die Verdünnung beginnt.

In dieser Zeit kann der Strom bei auf mindestens $50\ \Omega$, vielleicht über $100\ \Omega$ ansteigendem Widerstand das Material hier um 3000 bis 4000° aufheizen. Der kritische Punkt dürfte für Kupfer — vgl. Kap. 6 — bei etwa 8500° , 7500 b , $\rho = 2,4\text{ g/cm}^3$ zu erwarten sein. Da die spezifische Wärme gegen den kritischen Punkt hin stark ansteigt, wird er in der Temperatur ziemlich sicher nicht überschritten, aber wahrscheinlich etwa erreicht werden. Ob Druck und Dichte den kritischen Werten entsprechen, kann nur eine genauere gasdynamische Berechnung entscheiden. Wahrscheinlich werden die kritischen Werte in den äußeren Teilen des Drahtes unter-, in den inneren überschritten.

Bei abfallendem Strom stehen dem Druck der Größenordnung 10^4 b keine magnetischen Kräfte von Bedeutung mehr entgegen. Nur die Trägheitskräfte des explosiv expandierenden Materials ermöglichen für einige 10^{-9} sec die Existenz des hohen Drucks.

Bei dem jetzt begonnenen Expandieren dürfte für ein normales Verdampfen mit Trennung von Gas und Flüssigkeit die Zeit von 10^{-8} sec zu kurz sein. Es können weder Oberflächenspannungen den Trägheitskräften gegenüber Gasblasen bzw. Tröpfchen bilden, noch kann Wärmeleitung Energie zum Verdampfen an Flüssigkeitsoberflächen heranzubringen. Wir werden also mit ziemlich kontinuierlichen, nur statistische Schwankungen aufweisenden Gemischen bzw. Übergängen zwischen Flüssigkeit und Dampf rechnen müssen.

Abschnitt 1ε, Unterbrechen des Stromes. Beim Unterbrechen des Stromes kann, wie Oszillogramme zeigen, eine sehr hohe Spannungsspitze induziert werden. Das Unterbrechen ist deshalb so effektiv, weil eigentlich gar keine definierte Unterbrechung erfolgt. Der Widerstand steigt nur sehr stark kontinuierlich an. So besteht kein Anlaß zur Lichtbogen- oder Funkenbildung.

Kupfer als typisches Metall hat mit seinem einen 4s-Elektron stets ein halb gefülltes Leitfähigkeitsband. Sorgen wir nur durch ausreichenden Druck für so kleine Atomabstände, daß die Leitungselektronen un-

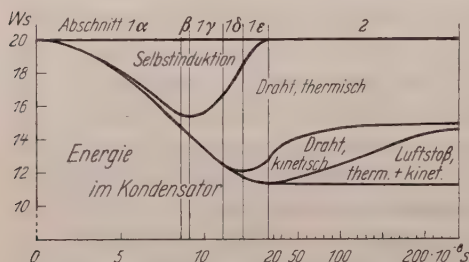


Fig. 3. Zeitlicher Verlauf der Verteilung der Energie

gehindert von einem Atom zum anderen übergehen können, so wird es auch oberhalb der kritischen Temperatur unabhängig vom Aggregatzustand metallisch leiten. Das ändert sich dagegen rasch, wenn die Atomabstände so groß werden, daß zum Übergang der Tunnel-effekt bemüht werden muß.

Dann fällt bekanntlich die Übergangswahrscheinlichkeit exponentiell mit zunehmendem Abstand. Dichteabnahmen um 10% lassen die Leitfähigkeit um Größenordnungen sinken.

Bei Kupfer dürfte die Dichte, bei der die Leitfähigkeit verschwindet, bei 0,5 bis 1 g/cm³ liegen². Bei dem dann vorliegenden Atomabstand von 5 bis 7 Å wird nämlich das Coulomb-Potential zwischen zwei Atomrümpfen der Bindungsenergie des Leitungselektrons von 7,7 eV gleich. Glücklicherweise genügt uns einstweilen diese grobe Angabe. Wir können daraus schließen, daß der Draht bei Expansion auf den doppelten Radius noch leiten wird, dagegen beim vier- bis fünffachen nicht mehr.

Nehmen wir im Mittel dreifachen Radius und eine Expansionsgeschwindigkeit von 2 km/sec an, so dauert Abschnitt 1ε etwa $1,5 \cdot 10^{-8}$ sec. Die erhebliche Unsicherheit dieser Zeitangabe wirkt sich hauptsächlich darin aus, daß die Höhe der in Fig. 1 eingetragenen Spannungsspitze unsicher ist.

Im Gegensatz dazu ist die gesamte in Wärme umgesetzte elektrische Energie für Abschnitt 1δ und 1ε ziemlich sicher zu ermitteln, ohne daß man die Einzelvorgänge quantitativ zu beherrschen braucht. Den Haupt-

² Bei Metallen, deren Leitfähigkeit durch Überdeckung eines an sich vollbesetzten Bandes mit dem nächsthöheren zustande kommt, kann die Leitfähigkeit bei sehr viel geringerer Expansion abfallen. Zum Beispiel beim Quecksilber fällt sie nach Messungen von F. BIRCH [Phys. Rev. **41**, 641 (1932)] bei 1,5facher Expansion rapide ab.

teil bildet nämlich die magnetische Energie der Selbstinduktion des Kreises. Sie wird quantitativ in Wärme umgesetzt, wenn der Strom von 2,6 kA auf 0 abfällt. Zusätzlich entnimmt dieser anfangs langsamer, gegen Schluß rascher in etwa $2,7 \cdot 10^{-8}$ sec abfallende Strom nur noch 1,2 Ws aus dem Kondensator, die um vielleicht 0,2 Ws unsicher sein könnten

$$W_{\text{Selbstinduktion}} + W_{\text{Kondensator}} \approx 3,4 \text{ Ws} + 1,2 \text{ Ws} = 4,6 \text{ Ws}. \quad (5)$$

Zum vollständigen Verdampfen des Drahtes bei 5000° wären 7,8 Ws erforderlich gewesen. Trotzdem ist mit den zur Verfügung stehenden 4,6 Ws das Erreichen des kritischen Punktes mindestens in Teilen des Drahtmaterials möglich, denn dessen Enthalpie liegt ja stets niedriger als die des gesättigten Dampfes bei niedrigerer Temperatur.

Abschnitt 2, Expansion. Für die Expansion verwenden wir folgendes Modell: Wir nehmen an, daß nach expansionsloser Aufheizung das Material in einem homogenen Zylinder expandiert. Temperatur, Druck, Dichte seien darin ortsunabhängig, die Geschwindigkeit radiusproportional. Nach qualitativem Vergleich mit dem Experiment scheint dies Modell die Wirklichkeit recht brauchbar anzunähern. Gasdynamisch muß selbstverständlich bei radialer Beschleunigung ein radiales Druckgefälle vorhanden sein, umgekehrt bei Wiederabbremung der Radialbewegung ein nach innen gerichtetes Druckgefälle, das sich eventuell sogar zu einer nach innen laufenden Stoßwelle aufteilen kann.

Das expandierende Medium ist Kupfer-„Naßdampf“, d.h. gesättigter Kupferdampf mit einem überaus feinen Nebel von Tröpfchen flüssigen Kupfers darin. Zum vollständigen Verdampfen reichte ja die umgesetzte elektrische Energie nicht aus. Auch wenn sie ausgereicht hätte, würde durch adiabatische Abkühlung der einatomige Dampf nach geringer Expansion in den Naßdampfzustand kommen. Der Zeitmaßstab ist jetzt gegenüber den Abschnitten 1 δ und 1 ϵ soviel gedehnter, daß die Abscheidung feiner Tröpfchen zeitlich möglich ist.

Es ist nicht unplausibel, daß dieser „Naßdampf“ Differenzen des Zustandes in seinem Innern besonders gut ausgleicht. Einmal ist durch die Dampfdruckkurve des Kupfers eine feste Abhängigkeit von Temperatur und Druck gegeben. Zweitens ist das Material durch die hohe Kondensationswärme des Kupfers wärme- und damit auch druckänderungsträge. Drittens ergibt die Möglichkeit der Relativbewegung von Tröpfchen und Dampf eine schwingungsdämpfende Viskosität.

Zur Berechnung der Expansion diene das in Fig. 4 quantitativ wiedergegebene T S -Diagramm. Die Erhitzungskurve $A \rightarrow B \rightarrow C$ können wir bereits auf Grund der folgenden Tatsachen mit der Gleichung $dS = dQ/T$ ziemlich willkürfrei ermitteln:

1. Von 2700° bis etwa 6000° liegt die Wärmekapazität des Drahtmaterials ziemlich konstant bei $8 \cdot 10^{-4}$ Ws/Grad.

2. Gegen den kritischen Punkt bei 8500° hin steigt sie stark an.
3. Insgesamt stehen zur Erwärmung $6,4$ Ws zur Verfügung.

Nach der adiabatischen Expansion, z.B. $C \rightarrow D$, schließen wir zum Kreisprozeß durch eine gedachte Kondensation $D \rightarrow B$. Aus dem ablesbaren ΔS folgt die freiwerdende Kondensationswärme $\Delta Q = T \Delta S$,

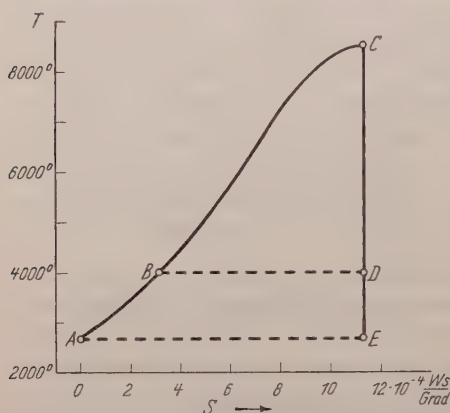


Fig. 4. Temperatur-Entropie-Diagramm für die Aufheizung und Expansion des Drahtmaterials. Nullpunkt der Entropieskala willkürlich gelegt!

daraus die Dampfmenge. Die etwas verminderte Verdampfungswärme λ bei 4000° ist zu bestimmen nach

$$\lambda_1 - \lambda_2 = (c_{F1} - c_p)(T_2 - T_1). \quad (6)$$

Die beim gesamten Kreisprozeß freiwerdende mechanische Arbeit ist nach dem ersten Hauptsatz gleich der Differenz der auf BC zugeführten und auf DB abgeführten Wärmeenergie. Die mechanische Arbeit auf BC ist wegen geringer Volumänderung gering; auf DB wäre die Kompressionsarbeit $pV = \text{Molzahl Dampf} \cdot R T$

zu leisten. Mithin wird auf CD diese Arbeit zusätzlich zu der aus der Differenz der Wärmeenergien bestimmten frei. Es ergibt sich:

Tabelle 1. Expansionsdaten

Punkt	Temperatur	Druck	Dampfanteil	Radius	Arbeit	An Luftstoßwelle	Kinetische Energie	Expansionsgeschwindigkeit	Expansionszeit
D	4000°	80 b	40 %	0,36 mm	2,4 Ws	$\approx 0,2$ Ws	2,2 Ws	2,2 km/s	$\approx 0,18 \mu\text{s}$
E	2700°	1 b	36 %	2,65 mm	3,6 Ws	$\approx 3,4$ Ws	klein	klein	$\approx 2 \mu\text{s}$

Bis Punkt D wird der größere Teil der mechanischen Arbeit frei, der sich vorerst überwiegend in kinetische Energie des expandierenden Kupfer-Naßdampfes umsetzt. Bei der Wiederabbremung übernimmt die Luftstoßwelle diese Energie.

Punkt D wurde als Punkt etwa maximaler Expansionsgeschwindigkeit so bestimmt, daß der Druck von 80 b und die Geschwindigkeit 2,2 km/sec etwa zusammengehörigen Werten von Druck und Nachströmgeschwindigkeit der weglauenden Luftstoßwelle entsprechen.

In Punkt E bei 2700° , 1 b hat der Kupferdampf etwa $1/10$ der Dichte normaler Luft. Es ist nicht unplausibel, daß der elektrische Durchschlag bei den noch herrschenden 3 kV/cm erfolgt, auch etwa $1/10$ der Durchbruchfeldstärke normaler Luft. Die Entladung ist also eine

gewöhnliche Niederdruck-Gasentladung. Nach Ausweis der Kerr-Zellenaufnahmen von W. MÜLLER¹ ist ihr im wesentlichen kontinuierliches Leuchten um Größenordnungen stärker als das thermische Leuchten der Kupfertröpfchen von 2700°. Der Kupferdampf in der äußersten, von der Entladung nicht erfaßten Schicht schneidet sein Absorptionsspektrum aus dem Licht heraus.

3. Instabilitäten

Bei den Kerr-Zellenaufnahmen fällt eine leicht unregelmäßige Scheibenstruktur des expandierenden Kupfernebels sehr ins Auge. Die wahrscheinliche Erklärung dafür ist:

Beim Aufheizen im festen Zustand (Abschnitt 1α) erfolgt durch Wärmeausdehnung eine Verlängerung um fast 2%. Die Zeit von wenigen 10^{-8} sec ist für ein Seitwärtsausweichen zu kurz. Einzig möglich ist longitudinales Stauchen. Nehmen wir zwischen den durch Korngrenzen oder statistische Zufälligkeiten plastisch unter Verdickung nachgebenden Stellen und den ungestörten Drahtpartien Längsdruckdifferenzen von 10^4 kp/cm² an, so ergeben sich Abstände von 0,5 mm zwischen den Stauchknoten. Die Longitudinalgeschwindigkeiten auf die Knoten zu betragen etwa 50 m/sec. In $2\ \mu$ s ergeben sie Wege von 0,1 mm, die gerade ausreichen, um die beobachtete longitudinale Ungleichmäßigkeit — wahrscheinlich der Dichte der Flüssigkeitströpfchen im Dampf — zu erklären. Zwanglos ergibt sich auch die rotationssymmetrische Struktur.

Verstärkend wirkt das Magnetfeld. Während des flüssigen Zustandes versucht es, dünnere Stellen weiter einzuschnüren. Aber dieser Effekt spielt keine große Rolle. Die Druckdifferenzen sind mit 10^3 b eine Größenordnung niedriger als die elastischen, desgleichen die zur Verfügung stehende Zeit.

Zweitens dürfte die verstärkte Heizung an verdünnten Stellen Ungleichmäßigkeiten steigern. Drittens wirkt ebenso die hydrodynamische Instabilität der Grenzfläche Kupferdampf—Luft.

4. Effekte ohne wesentlichen Einfluß

Die folgenden Effekte spielen bei unserem Beispiel keine Rolle. Damit ist nicht gesagt, daß sie nicht bei sehr viel sanfteren oder sehr viel intensiveren Drahtexplosionen bedeutsam werden.

Die Schwerkraft läßt den flüssig gewordenen Draht erst in $3 \cdot 10^{-3}$ sec um seinen Durchmesser fallen.

Ein knickendes Seitwärtsausweichen in Abschnitt 1α kann bei 0,05 mm Durchmesser nur mit Zeitkonstanten von mehr als etwa $3 \cdot 10^{-7}$ sec erfolgen, also nur, wenn die Aufheizzeit über etwa 10^{-6} sec liegt.

Die Instabilität der magnetischen Kräfte verstärkt auch das Seitwärts-Heraustreiben von Knickstellen, aber wiederum nur im μ s-Bereich.

Noch wesentlich niedriger liegen die Oberflächenspannungskräfte mit Drucken der Größenordnung 1 b. Sie sind nur bei sanften Durchschmelzungen von Interesse.

Der Skineffekt spielt bei dem betrachteten geringen Drahtradius trotz der kurzen Zeiten unseres Beispiels keine Rolle. Die Eindring-Zeitkonstanten betragen für das Kupfer kalt — vor — nach dem Schmelzen etwa $1 \cdot 10^{-8}$ sec — $0,2 \cdot 10^{-8}$ sec — $0,1 \cdot 10^{-8}$ sec.

Wärmeleitung innerhalb des Drahtmaterials bringt maximal einige 100 kW radialen Energietransport, Abstrahlung sogar nur maximal 10 kW. Sie sind vernachlässigbar den Aufheizleistungen von vielen MW nach Fig. 1 gegenüber. Nur in späten Zeitabschnitten der Expansion kühlt die Abstrahlung den Kupferdampfzylinder oberflächlich.

Der Ionisationsgrad hat nach der Saha-Gleichung am kritischen Punkt, bei 6000° und bei 4000° die Werte $3 \cdot 10^{-3}$, $5 \cdot 10^{-4}$ und $3 \cdot 10^{-5}$. So ist die Leitung durch freie Elektronen entweder relativ zur metallischen Leitung oder absolut genommen zu vernachlässigen.

5. Drahtexplosionen mit anderen Metallen und Versuchsdaten

Von dem behandelten Beispiel aus kann man den Verlauf von Drahtexplosionen mit anderen Metallen und anderen Strom-Spannungsdaten leicht qualitativ verstehen.

Zwischen den verschiedenen Metallen sind die Unterschiede gar nicht sehr groß. Die niedrig siedenden Metalle Quecksilber, Alkalimetalle, Cadmium, Zink usw. verwendet man experimentell kaum wegen ihrer ungünstigen mechanischen Eigenschaften. Vom Silber zum Wolfram steigt der Siedepunkt nur um einen Faktor 2. Steigert man die elektrische Leistung so, daß etwa gleiche Dampfmengen entstehen, so werden ziemlich ähnliche Explosionen resultieren. Ähnlich kann man die erheblichen Unterschiede im spezifischen elektrischen Widerstand durch geeignete Wahl des Strom-Spannungsverhältnisses weitgehend kompensieren*.

Bei Steigerung der elektrischen Leistung bilden die unterste Stufe sanfte Durchschmelzungen, bei denen im Verlauf von Millisekunden die Instabilitäten der Oberflächenspannung als trennende Kraft wirken. Bei etwas höherer Leistung werden die magnetischen Kräfte überwiegend, die im Verlauf von etlichen Mikrosekunden den flüssigen Draht durch ihre Instabilitäten zerteilen und z. B. Knickstellen zur Seite herausschleudern.

Eine eigentliche Drahtexplosion liegt erst vor, wenn in der kurzen Zeitspanne zwischen Erreichen des Siedepunktes und Stromunterbrechung noch eine Aufheizung erfolgt, die zu einer wesentlichen Metall-

* Das bedingt aber bei Wolfram und ähnlichen Metallen ein durchschlagfesteres umgebendes Medium als normale Luft, um den hier geschilderten Ablauf zu erreichen.

dampfbildung führt. Der Bereich ist recht weit zwischen wenigen Prozent Verdampfung, die schon zum heftigen Zerstäuben der Flüssigkeit führen, und vollständiger Verdampfung. So wird man mit Drahtexplosionen meistens in diesem qualitativ ähnlichen Bereich liegen, aus dessen Mitte auch unser Beispiel gewählt wurde. Der Spitzenpunkt liegt zwischen normalem Siedepunkt und der Umgebung des kritischen Punktes. Es expandiert Metaldampf mit einem feinen Nebel von flüssigen Metalltröpfchen darin. Bei gleichem Verdampfungsgrad kann man noch durch Steigern der Selbstinduktion die Zeitdauern der ersten Abschnitte des Vorgangs (1α bis 1γ) steigern und damit die Instabilitäten stärker wirksam werden lassen und umgekehrt.

Um zu extremen Zuständen zu kommen, muß die Aufheizgeschwindigkeit in der entscheidenden Zeitspanne nach dem Siedebeginn stark gesteigert werden. Die dazu erforderliche Spannungssteigerung bedingt Einbettung des Drahtes in ein elektrisch durchschlagsfestes Medium. Man gelangt dann vom Gebiet der metallischen Leitung ohne Stromunterbrechung ins Gebiet der Plasmaleitung. Grob abgeschätzt werden 10^6 V/cm Temperaturen über 10^5 Grad und Drücke über 10^6 b ergeben

6. Anhang: Kritische Daten des Kupfers

Die kritischen Daten, die ja für unsere Überlegungen von erheblichem Interesse sind, sind leider für kein Metall außer Quecksilber gemessen und auch für dieses nur wenig zuverlässig. Angegeben wird im d'Ans-Lax für Hg:

$$T_{\text{krit}} \approx 1735^\circ \text{ K}, \quad p_{\text{krit}} \approx 1040 \text{ b}, \quad V_{\text{krit}} \approx 40 \text{ cm}^3/\text{Mol}. \quad (7)$$

Nun gelten einige Ähnlichkeitsregeln auch für Quecksilber, die für andere organische und anorganische, nicht stark assoziierte Flüssigkeiten gelten. So darf man ihre Gültigkeit für flüssige Metalle wohl allgemein erwarten. Die drei Beziehungen sind:

$$V_{\text{krit}}/V_{\text{flüss, am norm. Siedepkt.}} = 2,5 \text{ bis } 3,0, \quad (8)$$

$$T_{\text{krit}}/T_{\text{Siede bei } 0,01 p_{\text{krit}}} = 1,6 \text{ bis } 1,85, \quad (9)$$

$$R T_{\text{krit}}/p_{\text{krit}} V_{\text{krit}} = 3,0 \text{ bis } 4,0. \quad (10)$$

Quecksilber fällt in (8) und (10) mit den Zahlen 2,5 und 3,4 nicht heraus; bei (9) liegt es dagegen mit 2,14 etwas zu hoch. Daß übrigens in (8) der normale Siedepunkt erscheinen kann, liegt daran, daß das Flüssigkeitsvolumen beim Sieden bei 1 b und bei z. B. $0,01 p_{\text{krit}}$ nicht nennenswert verschieden ist.

Für siedendes Kupfer finden wir mit CLAUSIUS-CLAPEYRON und der Wärmeausdehnung oberhalb des Schmelzpunktes:

$$\text{bei } p = 75 \text{ b: } T_{\text{Siede}} \approx 3960^\circ, \quad V_{\text{Mol}} \approx 10,5 \text{ cm}^3. \quad (11)$$

Nach (8) folgt daraus V_{krit} , nach (9) T_{krit} und nach (10) p_{krit} , wobei wir die Zahlenwerte von Quecksilber als für Kupfer besser gültig als die der anderen Flüssigkeiten ansehen.

$$\text{Cu: } T_{\text{krit}} \approx 8500^\circ \text{ K}, \quad p_{\text{krit}} \approx 7500 \text{ b}, \quad V_{\text{krit}} \approx 26 \text{ cm}^3. \quad (12)$$

Das richtige $0,01 p_{\text{krit}}$ wurde dabei für (11) durch eine rasch konvergierende sukzessive Approximation gewonnen.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

Zur Statistik der Elektronenlawinen im ebenen Feld. II

Von

LOTHAR FROMMHOLD

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 20. September 1957)

In Fortsetzung einer früheren Arbeit des Verfassers¹ wird die Statistik der Gasverstärkung einzelner Elektronen für homogene Felder in Gasen wie Sauerstoff und Luft gemessen. Es ergibt sich für Elektronenlawinen ohne Nachfolger ($\mu \ll 1$) eine Verteilungsfunktion, wie sie bereits in Dämpfen erhalten wurde und die in Übereinstimmung mit der theoretisch berechneten ist. Damit dürfen wir annehmen, daß diese Verteilungsfunktion eine allgemeine Eigenschaft der Gasverstärkung und z. B. unabhängig von der Gasart ist. — Die Beobachtung zeigt weiterhin, daß die Statistik durch Nachlieferung (sog. γ -Effekt) in charakteristischer Weise modifiziert wird; auch diese Verteilungsfunktion ist mit der unter Berücksichtigung der Nachlieferung berechneten in Übereinstimmung.

1. Einleitung

Nachdem neuerdings Elektronenlawinen nach der elektrischen Methode auch in Gasen ohne Dampfzusatz (wie Luft, Sauerstoff, Stickstoff) nachgewiesen sind^{2,3}, wird in dieser Arbeit für solche Elektronenlawinen die Statistik der Trägerzahlen ermittelt. Die bisherigen Messungen¹ wurden in Dämpfen ausgeführt und ergaben Übereinstimmung der Trägerzahlstatistik mit der berechneten^{4,5}. In Gasen treten jedoch in erheblich stärkerem Maße Nachfolgelawinen (sog. γ -Effekt) auf, so daß hier die Statistik modifiziert wird, falls μ größere Werte annimmt.

2. Die Meßanordnung

Die Entladungsstrecke (Fig. 1) bestand aus einem Plattenkondensator mit Rogowski-Profil zur Erzeugung eines homogenen Feldes

¹ FROMMHOLD, L.: Z. Physik **144**, 396 (1956). Vgl. auch die zusammenfassende Darstellung von H. RAETHER: Z. angew. Phys. **7**, 52 (1955), Abb. 6.

² VOGEL, J., u. H. RAETHER: Z. Physik **147**, 141 (1957). — VOGEL, J.: Z. Physik **148**, 355 (1957).

³ SCHMIDT-TIEDEMANN, K. J.: Diss. Hamburg 1957. Erscheint demnächst in Z. Physik.

⁴ WIJSMAN, R. A.: Phys. Rev. **75**, 833 (1949).

⁵ LEGLER, W.: Z. Physik **140**, 221 (1955).

(Plattenabstand 2 cm). Sie war unter einer Glasglocke montiert, die mittels rotierender Vorpumpe über eine Kühlfalle (CO_2 -Schnee mit Spiritus) evakuiert und gefüllt wurde

- a) mit Sauerstoff aus einer Stahlflasche, Reinheit 99,9%,
- b) mit Luft (Zimmerluft — getrocknet),
- c) mit Methan (aus einer Stahlflasche)

meist mit einem Druck von etwa 500 Torr ($pd \sim 1000 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$). Der Druck wurde mit einem Quecksilbermanometer, das über eine Kühlfalle mit dem Rezipienten verbunden war, abgelesen. Alle Druckangaben haben wir auf 20°C reduziert.

Zur Auslösung der Primärelektronen beleuchteten wir durch ein Quarzfenster die Mitte der Kathode mit einem Strahl ultraviolett Lichtes, dadurch entstanden alle Lawinen im homogenen Teil des Feldes, was wir oszilloskopisch kontrollieren konnten⁶. Die Spannung an der Entladungsstrecke (bis 40000 V) wurde einem Röntgennetzteil entnommen, das von einem röhrengeregelten Wechselspannungsgenerator (Konstanz $\pm 0,05\%$) gespeist wurde. Die Spannungsmessung erfolgte mit einem $100 \text{ M}\Omega$ -Meßwiderstand mit Kompensator; wir konnten ständig kontrollieren, daß keine größeren Spannungsschwankungen als $5 \cdot 10^{-4}$ vorkamen. Zum Aufnehmen der Statistik verwendeten wir einen Meßverstärker* der über Dioden (Fig. 2) auf einen Impulshöhenanalysator** und elektronischer Zähleinrichtung*** sowie auf ein Kontrollzählgerät mit Diskriminator† arbeitete. Das Gesamtauflösungsvermögen war 10^{-5} sec .

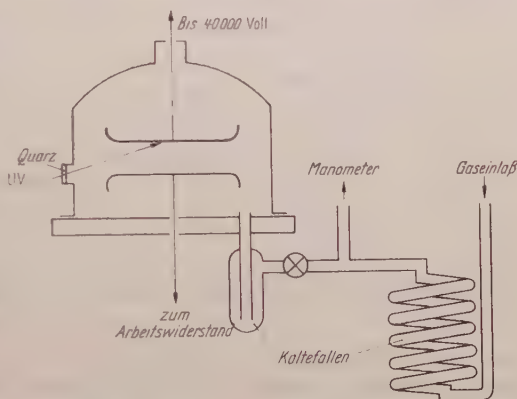


Fig. 1. Rezipient und Gaseinlaß schematisch

* Gegenkopplungsfaktor $(1 + kV) \cong 30$, $\frac{1}{2} \text{ MHz}$ -Bandbreite, Ausgangsspannung bis $+90 \text{ V}$ besser als 2% linear, Verstärkung stufenweise regelbar, max. $2 \cdot 10^4$, Rauschersatzspannung etwa $15 \mu\text{V}_{\text{eff}}$ am Gitter der ersten Röhre.

** Type 101 N, Firma Dynatron (England).

*** Aus Berkeley-Einheiten zusammengesetzt, Type 705 A.

† Type FEI, Firma Rohde und Schwarz.

⁶ FROMMHOLD, L.: Z. Physik **145**, 324 (1956).

3. Meßverfahren

Um die statistischen Schwankungen in der Gasverstärkung zu beschreiben, wurde die relative Häufigkeitsdichte H der Lawinenimpulse in Abhängigkeit von der Trägerzahl n gemessen.

Die Messung ging wie folgt vor sich (Fig. 2):

Die Zähler Z_1, Z_2 stellten wir auf „Null“. Der prellfreie Quecksilberschalter S wurde eingeschaltet. Z_1 zählte dann die Gesamtpulszahl oberhalb eines fest eingestellten Pegels (etwa 3 V) und Z_2 die Impulse des Meßintervalles, dessen Breite u proportional dem Trägerzahlintervall Δn ist und die meist 1 oder 2 V

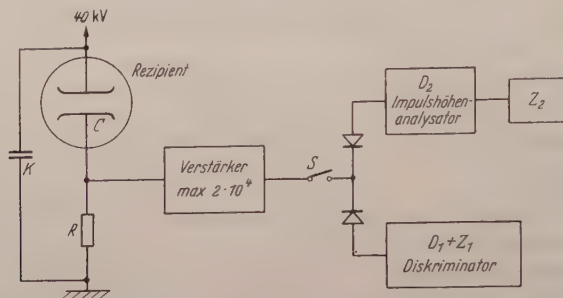


Fig. 2. Schema der elektronischen Anordnung. $Z_{1,2}$ = elektronische Zähler, D_1 = Diskriminator (Pegel etwa 3 V), D_2 = Impulshöhenanalysator (Intervallbreite etwa 1 bis 2 V), K = 5000 pF

betrug. Sobald Z_2 etwa bis 100 gezählt hatte, unterbrachen wir mittels des Schalters S und lasen die Ziffern z_1 und z_2 ab. Die sog. Häufigkeitsdichte H (Ordinatenmaßstab der Fig. 3—6) berechneten wir dann nach

$$H = \frac{z_2}{u \cdot z_1}$$

und den etwa zu erwartenden Fehler nach $\pm \frac{1}{z_2} \sqrt{z_2}$. Dieser Fehler ist in den Meßergebnissen Fig. 3—6 eingetragen. Er liegt bei 10%. Durch wiederholtes Messen im gleichen Intervall bestätigten wir stichprobenweise diese Fehlergrenzen.

Die Trägerzahlen n , die der Spannung am Meßintervall entsprachen wurden aus Spannungseichung des Verstärkers und Kapazitätsmessung des Eingangskreises berechnet nach

$$n = \frac{C \cdot U}{e \cdot V} \cdot k.$$

Hierbei ist $C = 38$ pF Eingangskapazität, V = Verstärkungsziffer des Meßverstärkers, U die am D_2 -Analysator eingestellte Spannung, $e = 1,6 \cdot 10^{-19}$ Coul die Elementarladung und k eine Konstante, die korrigieren soll, daß die RC -Integrationszeit des Eingangskreises ($2 \cdot 10^{-5}$ sec) in der Größenordnung der Lawinenimpulsdauer ($\cong 3 \cdot 10^{-5}$ sec) liegt. Wir haben abgeschätzt $k = 1,4$. Die Absoluteichung der Trägerzahlen ist um höchstens 20% fehlerhaft.

Durch Regelung der UV-Einstrahlung wurde eine Impulsdichte von 10^3 pro sec eingestellt, wodurch eine Überlagerung zweier Impulse praktisch vermieden ist. Eine wichtige Frage war, ob die Impulse die bekannten Lawinenimpulse⁷ oder Störimpulse (etwa von Gleitentladungen herrührend) darstellen, was wir mit Hilfe eines empfindlichen Breitbandverstärkers mit Oszillographen (Bandbreite 10^7 Hz, Empfindlichkeit bis 10^{-4} V/cm) kontrollierten. Wir beobachteten nur solche Lawinenimpulse, nachdem vor jeder Messung die Elektroden* sorgfältig poliert und mit einer Glimmentladung „abgebrannt“ waren (Wechselstrom, 300 mA, einige Stunden, etwa $1/10$ Torr Luft). Auch bei der Untersuchung der Lawinenimpulse auf Nachlieferung verwendeten wir den Breitbandoszillographen und erhielten auf diese Art⁸ eine Abschätzung für μ .

Für die Berechnung der Nachlieferungswahrscheinlichkeit μ ist es nötig, die Durchbruchspannung U_D zu messen ($\mu - 1$). Die angegebenen Werte der Durchbruchspannung beziehen sich stets auf dieselbe Rezipientenfüllung, in der auch die Statistik gemessen wurde. Wir haben bei langsam steigender Spannung — nachdem die letzte Statistik gemessen war — jeweils etwa fünf Durchschläge beobachtet und dadurch einen Spannungswert U_D bis auf etwa ± 35 V reproduzierbar erhalten.

Den Mittelwert der Gasverstärkung \bar{n} entnimmt man einer Messung entweder rechnerisch nach dem üblichen Verfahren

$$\bar{n} = \frac{\sum H_i \cdot n_i}{\sum H_i}$$

(i = Nummer des Intervalls, H_i = Häufigkeitsdichte im i -ten Intervall, n_i = mittlere Trägerzahl im i -ten Intervall), falls der Trägerzahlmeßbereich nicht zu eng war. Besser erhalten wir ihn graphisch aus der Neigung der Verteilungsfunktion, die im halblogarithmischen Maßstab eine Gerade ergibt (vgl. Fig. 3—6)

$$\operatorname{tg} \varphi = - \frac{1}{\bar{n}}.$$

Beide Werte stimmen nach unseren Messungen überein.

4. Ein neues Verfahren zur Messung von α

Der Mittelwert der Gasverstärkung \bar{n} hängt mit dem ersten Townsend-Koeffizienten α (α = Zahl der von einem Elektron pro cm Weg in Feldrichtung gebildeten Ionenpaare) nach der Gleichung

$$\bar{n} = e^{\alpha d}$$

* Schlecht polierte Elektroden führten zu Störimpulsen.

⁷ Vgl. Fußnote 2 auf S. 172.

⁸ Vgl. Fußnote 3 auf S. 172.

zusammen (d — Plattenabstand; homogenes Feld), bzw. falls auch negative Ionen gebildet werden, nach

$$\bar{n} = \left(\frac{\alpha}{\alpha - \eta} \right)^2 e^{(\alpha - \eta)d} \quad (\text{vgl. } ^9)$$

(η — Zahl der von einem Elektron pro cm Weg in Feldrichtung gebildeten negativen Ionen).

Da man den Mittelwert \bar{n} einer Statistik auch bei engerem Trägerzahlbereich aus der Neigung der Geraden (s. oben) leicht entnehmen kann, hat man hierin eine Möglichkeit zur Messung von α^* , die vorzugsweise bei niedrigem E/p (etwa < 100) anzuwenden ist und dadurch eine wertvolle Ergänzung zum üblichen Verfahren darstellt, wie es etwa bei ¹⁰ angewendet wird und das gerade bei kleinem E/p ungenau wird. Die erreichbare Genauigkeit ist für \bar{n} etwa 10%, d.h. bei $\alpha d \cong 10$ erhalten wir α auf 1% genau. Die Beschränkung auf niedrige E/p ergibt sich aus der Forderung, wonach der Wert E/α (E = elektrische Feldstärke) groß sein soll gegenüber der Ionisierungsspannung des Gases¹¹.

5. Ergebnisse und Diskussion

a) Sauerstoff. Das Ergebnis der Messung in Sauerstoff zeigt Fig. 3 ($pd = 1000$ Torr · cm). Im halblogarithmischen Maßstab erhalten wir eine Gerade als Verteilungsfunktion ähnlich wie in Dämpfen. Wir konnten oszillographisch abschätzen, daß bei Messung 4 höchstens jede 20. Elektronenlawine einen Nachfolger durch kathodischen Photoeffekt erzeugte, der Nachlieferungskoeffizient μ errechnet sich danach zu $\mu \cong \frac{1}{30} \cong 0,03$. Bei den Messungen 1 bis 3 war μ noch kleiner. Diese Messungen stellen mithin eine hinreichend nachlieferungs freie Statistik der Elektronenlawinen dar.

Messung Fig. 4 reproduziert diese Statistik über den großen Trägerzahlbereich von $0,5 \cdot 10^5$ bis $30 \cdot 10^5$ ($\mu \leq 0,07$).

Vergleichen wir den Mittelwert der Messung Fig. 4 mit den bekannten α - und η -Werten^{10, 12}, so finden wir für $E/p = 36,4$, $\alpha/p = 0,077$ und $\eta/p = 0,070$.

Damit berechnen wir

$$\bar{n} = \left(\frac{\alpha}{\alpha - \eta} \right)^2 e^{(\alpha - \eta)d} = e^{12,4} \quad (pd = 994).$$

* Falls man η gegenüber α nicht vernachlässigen kann, sind für ein Wertepaar (α, η) zwei Statistiken bei gleichem E/p und verschiedenem \bar{n} , d.h. verschiedenem pd , erforderlich, vgl. Fußnote 14.

⁹ LEGLER, W.: In Vorbereitung.

¹⁰ HARRISON, M. A., u. R. GEBALLE: Phys. Rev. **91**, 1 (1953).

¹¹ SCHLUMBOHM, H.: In Vorbereitung.

¹² BURCH, D. S., u. R. GEBALLE: Phys. Rev. **106**, 183 (1957).

Aus der Neigung der Geraden erhalten wir hiermit übereinstimmend

$$\bar{n} = 3,3 \cdot 10^5 = e^{12,7}.$$



Fig. 3. Statistik der Trägerzahlen für Elektronenlawinen in Sauerstoff. $p_0 d = 1006$ Torr · cm, $p_0 = 503$ Torr, $E/\alpha = 500$ V. Die Messungen unterscheiden sich in der Spannung an der Entladungsstrecke

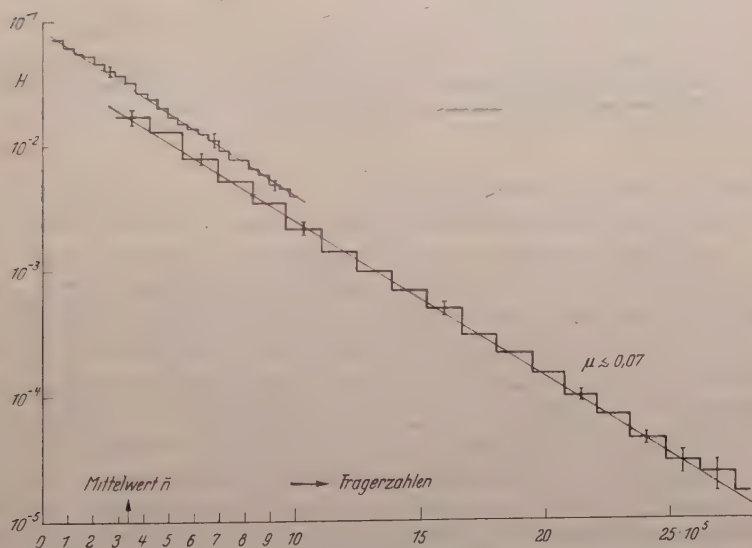


Fig. 4. Statistik der Trägerzahlen für Elektronenlawinen in Sauerstoff. Für beide Messungen gilt: $p_0 = 497$ Torr, $p_0 d = 994$ Torr · cm, $E/\alpha = 36,4$, $U = 36 260$ V, Durchbruchspannung $U_D = 36 800$ V, $E/\alpha = 500$ V. Die Messungen unterscheiden sich in der eingestellten Verstärkerziffer des elektronischen Verstärkers; sie liefern eine Gerade mit gleicher Steigung; dadurch ist die statistische Verteilungsfunktion über den großen Trägerzahlbereich von $0,5$ bis $30 \cdot 10^5$ Träger ermittelt

b) Luft. Füllt man den Rezipienten mit getrockneter Luft, so daß pd etwa = 1000 ist, so erhält man bei kleinen Gasverstärkungen ($\bar{n} \cong 5 \cdot 10^4$ Träger) wieder eine Gerade; vgl. Fig. 5, Messung 1. Erhöhen wir die Spannung an der Entladungsstrecke, so erhalten wir Statistiken, die in unserem Maßstab eine konkave Krümmung zeigen, die mit steigender Spannung immer stärker wird, Messung 2, 3, Fig. 5. Beobachten wir die Lawinenimpulse oszillographisch unter Bedingungen, die zu

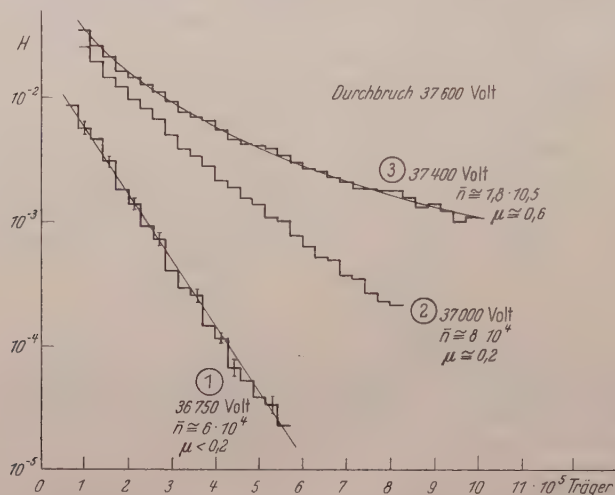


Fig. 5. Statistik der Trägerzahlen für Elektronenlawinen in trockner Luft. Die Messung 1 bis 3 unterscheiden sich durch die angelegte Spannung. Während 1 bei verhältnismäßig geringer Gasverstärkung noch eine Gerade liefert ($\mu \ll 1$), ergeben 2 und 3 mit steigender mittlerer Gasverstärkung, d.h. wachsendem μ , wegen Nachlieferung konkave Krümmungen. $pd = 1013$ Torr · cm, $U_D = 37600$ V, $E/\alpha = 3500$ V

solchen gekrümmten Verteilungen führen, so erkennen wir bei sehr vielen Impulsen einen oder mehrere Nachfolgelawinen, die durch Photoeffekt oder auftreffende positive Ionen an der Kathode gestartet sind. *Der Statistik der Gasverstärkung ist die Statistik der Lawinennachfolge überlagert.* In unserem Falle erhalten wir hauptsächlich Photonennachlieferung, d.h. verschiedene Elektronenlawinen starten innerhalb einer so kurzen Zeit (10^{-7} sec), daß sie wie eine einzige, besonders große Lawine gezählt werden (Auflösungsvermögen der Apparatur ist 10^{-5} sec). In der resultierenden Verteilungsfunktion werden daher weniger kleine und mehr große Lawinen vorkommen, d.h. sie wird konkav gekrümmt sein wie in Fig. 5. LEGLER hat auf Grund dieser Beobachtung die Statistik der Gasverstärkung unter Berücksichtigung der Nachlieferung berechnet¹³. Durch Vergleich mit dieser Theorie erhalten wir die Werte μ , die in Spalte 2, Tabelle 1 eingetragen sind. Im Rahmen der erreichten

¹³ Vgl. Fußnote 9 auf S. 176.

Genauigkeit stimmen diese Werte überein mit dem aus der Durchbruchspannung ermittelten γ -Wert ($\mu = 1$).

Ein Wert $\mu = 0,2$, wie wir ihn für Messung 1 errechnet haben, sollte sich bereits durch eine schwache Krümmung bemerkbar machen. Wegen der Fehler von etwa 10% der Ordinatenwerte und des engen Trägerzahl-Meßbereiches ist diese Krümmung nicht deutlich zu erkennen.

Zusammenfassend ist zu bemerken, daß der Typus der konkav gekrümmten Verteilungsfunktion, wie wir ihn in Luft gemessen haben, repräsentativ für Elektronenlawinen mit Nachlieferung ist. Es besteht kein Grund, daran zu zweifeln, daß sich auch in Luft bei großem Trägerzahlbereich eine *Gerade* ergibt, falls nur μ genügend klein ist, wie im Fall der Dämpfe und des Sauerstoffes*.

Tabelle 1. Vergleich der berechneten mit den aus der Statistik erhaltenen Werten der Nachlieferungswahrscheinlichkeit μ

Messung Nr.	μ aus Statistik	μ durch Berechnung aus U_D	Eingestellte Spannung
1	$\leq 0,2$	0,2	36750 V
2	$0,2 \pm 0,1$	0,3	37000 V
3	$0,6 \pm 0,1$	0,67	37400 V
Durchbruch		1	$U_D = 37600$ V

Zur Berechnung der Nachlieferungswahrscheinlichkeit μ haben wir die Durchbruchspannung bestimmt: $U_D = 37600$ V. Bei der Durchbruchspannung U_D setzen wir $\mu_D = \gamma_D \cdot e^{(\alpha - \eta)D} = 1$. Wir setzen näherungsweise im Bereich zwischen $U = 36750$ V (Messung 1) und $U = U_D$ den kathodischen Nachlieferungskoeffizienten $\gamma = \text{const} = \gamma_D$ sowie $\eta = \text{const}$. Für α nehmen wir an**

$$\frac{\alpha}{p} = 4,3 \cdot e^{-\frac{217}{E/p}}$$

bzw.

$$\alpha d = 4300 \cdot e^{-\frac{217000}{U}}$$

Damit berechnen wir die Werte μ der Tabelle 1, Spalte 3.

Vergleichen wir den Mittelwert der Messung Fig. 5 mit den α - und η -Werten von HARRISON und GEBALLE, und übernehmen wir bei $E/p = 36,3$ (Messung 1)

* Wir haben versucht, auch in Sauerstoff gekrümmte Nachlieferungsstatistiken zu erhalten, indem wir übergingen zu immer größeren Gasverstärkungen \bar{n} . Wir erhielten nur sehr schwache Krümmungen, wobei aber bereits zahlreiche Durchbrüche erfolgten (etwa 1 pro Minute bei einer Einstrahlung von 10^8 Elektronen pro Sekunde). Die Krümmung — übereinstimmend mit der oszillographischen Abschätzung von μ — entsprach einem Werte $\mu \cong 0,2$. Aus der Tatsache, daß hierbei Funken auftraten, obgleich μ sicher kleiner als 1 war, schließen wir, daß der Durchbruch in Sauerstoff nicht nach den Townsendschen Vorstellungen stattfinden kann, sondern im Sinne des Kanalaufbaues zu deuten ist. Ausführliche Untersuchungen dieser Erscheinung sind in Vorbereitung.

** Diese Formel haben wir den α -Messungen¹⁰ entnommen.

den Wert $\alpha/p = 0,012$ und $\eta/p = 0,003$, so erhalten wir $\bar{n} = e^{9,6}$. Aus der Neigung der Geraden entnehmen wir etwa übereinstimmend $\bar{n} = 6 \cdot 10^4 = e^{11}$.

c) **Methan.** In Ergänzung zur Messung der Statistik in organischen Dämpfen fügen wir eine Messung in Methan bei großem pd an, Fig. 6. Wir finden auch hier eine Gerade in Übereinstimmung mit der Theorie und der oszillographischen Abschätzung der Nachlieferung, die $\mu < 0,01$ ergab.

Da hier $\eta \ll \alpha$ ist, was wir oszillographisch prüfen konnten, bietet diese Statistik die Möglichkeit zur Bestimmung von α . Mit dem aus der



Fig. 6. Statistik der Trägerzahlen für Elektronenlawinen in Methan. $p_0 d = 540 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$, $U = 19160 \text{ V}$
 $E/\alpha = 1500 \text{ V}$

Neigung der Geraden bestimmten Mittelwert \bar{n} erhalten wir aus

$$\bar{n} = 6,7 \cdot 10^5 = e^{\alpha d}$$

mit $pd = 540 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ den Wert

$$\frac{\alpha}{p} = 0,025 \frac{1}{\text{Torr} \cdot \text{cm}} \quad \text{bei} \quad \frac{E}{p} = 35,5 \frac{\text{Volt}}{\text{Torr} \cdot \text{cm}}.$$

d) **Schlußbemerkung.** Übereinstimmend mit der Theorie ergaben alle statistischen Messungen der Trägerzahlen von Elektronenlawinen das gleiche Verteilungsgesetz. Bezeichnet dW die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten einer Elektronenlawine mit einer Trägerzahl zwischen n und $n + dn$, so gilt

$$dW = \frac{1}{\bar{n}} e^{-\frac{n}{\bar{n}}} dn.$$

Hierbei ist $\tilde{n} = \left(\frac{x}{x - \eta} \right)^2 e^{(x - \eta)d}$ mit $0 < \eta < x$. Die Herleitung¹⁴ verlangt drei Voraussetzungen, damit diese Verteilung erfüllt ist: 1. Die Statistik soll nachlieferungsfrei sein ($\mu < 1$). 2. Die Ionisierungsspannung U_i des Gases soll klein sein gegenüber E/α (E = elektrische Feldstärke). 3. Die Raumladungsverzerrungen in der Elektronenlawine soll hinreichend gering sein. Für unseren Fall bedeutet das $n \lesssim 10^6 \dots 10^7$.

Wir konnten die Voraussetzungen in allen Gasen erfüllen mit Ausnahme von Luft, wo die Nachlieferung so groß war, daß die Verteilungsfunktion in charakteristischer Weise modifiziert wurde. —

Die Trägerzahlstatistik der Elektronenlawinen scheint demnach gänzlich unabhängig vom Gas zu sein und nur vom Mittelwert der Gasverstärkung abzuhängen. Für sie ist charakteristisch, daß die mittlere Streuung gleich dem Mittelwert ist.

Die vorliegende Arbeit wurde im Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg angefertigt. Herrn Professor Dr. H. RAETHER danke ich für die Anregung dieser Arbeit und das große Interesse, das er ihr entgegengebracht hat. Herrn W. LEGLER danke ich für zahlreiche Diskussionen und den Herren H. WALTER und H. SCHLUMBOHM für ihre Hilfe beim Aufbau der Apparatur sowie für ihr bereitwilliges Eingehen auf diverse Sonderwünsche zur vorliegenden Arbeit. Der Firma Dr. Richard Seifert, Hamburg, und der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die leihweise Überlassung verschiedener unentbehrlicher Hilfsgeräte.

¹⁴ Vgl. Fußnote 5 auf S. 172.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Technischen Hochschule München

Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur

Von

G. HETTNER

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 4. November 1957)

Die Bremsstrahlung eines isothermen Plasmas wird für Temperaturen bis zu etwa 10^8 °K streng berechnet. Es zeigt sich, daß die oft benutzte „weiche Näherung“ recht ungenau ist. Es wird untersucht, in welchen Bereichen von Temperatur und Frequenz wesentliche Korrekturen wegen der endlichen Ausdehnung der Ionen und wegen ihres endlichen Abstandes nötig sind. Eine Methode zur Abschätzung dieser Korrekturen wird angegeben. Als Anwendungsbeispiel wird das Bremsspektrum des Quecksilberhochdruckbogens berechnet und mit der Erfahrung verglichen.

Einleitung

Die Fortschritte in der Erzeugung von Plasmen hoher Temperatur legen es nahe, die von den geladenen Teilchen des Plasmas emittierte oder absorbierte Strahlungsenergie genauer zu berechnen, als das bisher geschehen ist. Im folgenden soll der kontinuierliche Teil des Spektrums betrachtet werden, und zwar nur die Bremsstrahlung, die von der Natur der Atome des Plasmas weitgehend unabhängig ist, und auch in einem vollständig ionisierten Gas auftritt, wo sie sogar den einzigen Energieverlust bildet. Da in einem isothermen Plasma im statistischen Mittel Kugelsymmetrie herrscht, kommt es bei dieser Aufgabe nicht auf die Richtungsverteilung der Bremsstrahlung an, sondern nur auf die gesamte spektrale Strahlungsemission der geladenen Teilchen unter dem Einfluß ihrer elektromagnetischen Wechselwirkung. Wir denken dabei an isotherme oder nahezu isotherme Plasmen von etwa 10^3 bis 10^8 °K, für die die mittlere Teilchenenergie 10^{-1} bis 10^4 eV beträgt. Dabei werden folgende Vereinfachungen zulässig sein:

1. Selbst für Plasmen von einer Temperatur von 10^8 °K ist das Verhältnis der mittleren kinetischen Energie der Elektronen zu ihrer Ruheenergie kleiner als etwa $1/50$, für Ionen natürlich noch wesentlich kleiner. Die nichtrelativistische Näherung wird daher ausreichen*.

2. In dem betrachteten Bereich von Elektronenenergien ist die kürzeste Wellenlänge der Bremsstrahlung noch groß gegen diejenigen Abstände Ion-Elektron, in denen — klassisch gesprochen — der wesentliche

* Herr Dipl.-Phys. J. BRUNNER hat das relativistische und das nichtrelativistische Ergebnis im Bereich der Bornschen Näherung verglichen und fand für 10^8 °K eine Abweichung von höchstens 2%.

Teil der Bremsstrahlung emittiert oder absorbiert wird. In diesem Fall brauchen wir die Retardierung nicht zu berücksichtigen und nur elektrische Dipolstrahlung zu betrachten.

3. Bei der Wechselwirkung zwischen einem Elektron und einem Z -fach positiven Ion von der Masse M läßt sich die Mitbewegung des Ions streng berücksichtigen, indem man die Elektronenladung e durch eine „effektive“ Ladung

$$e' = e \frac{1 - Z \frac{m}{M}}{1 + \frac{m}{M}}$$

und die Elektronenmasse m durch die effektive Masse

$$m' = \frac{m}{1 + \frac{m}{M}}$$

ersetzt. Dies ist aber für alle Ionen eine unwesentliche Korrektur.

4. Zunächst werden wir das Ion als Punktladung und als isoliert von den anderen Ionen ansehen. Es werden also — klassisch gesprochen — nur solche Elektronenbahnen betrachtet, die nicht in das Ion eindringen, und deren wesentlicher Teil nicht merklich von den Nachbarionen beeinflusst ist. Später werden wir uns von dieser Einschränkung befreien.

1. Emission und Absorption im reinen Coulomb-Feld

Die gesamte, d. h. über alle Streurichtungen der Elektronen und über alle Ausstrahlungsrichtungen integrierte auf die Frequenzeinheit bezogene Strahlungsleistung eines homogenen Elektronenstromes von einem Elektron je sec und cm^2 ist unter den angegebenen vier Voraussetzungen von A. SOMMERFELD¹ in Form eines geschlossenen Ausdrucks berechnet worden. Dieser Ausdruck läßt sich folgendermaßen schreiben:

$$W_\nu = C \eta^2 L(\eta, \eta'), \quad (1)$$

worin

$$C = \frac{32\pi}{3} \frac{\hbar^2 e^2}{c^3 m^2} = 3,84 \cdot 10^{-49} \text{ erg cm}^2 \text{ sec},$$

$$\eta = \frac{Ze^2}{\hbar v} = \frac{Z}{\hbar a_0}, \quad \eta' = \frac{Ze^2}{\hbar v'} = \frac{Z}{\hbar' a_0}, \quad \frac{m}{2} (v^2 - v'^2) = \hbar \nu,$$

$$L(\eta, \eta') = \frac{\pi^2 x}{(e^{2\pi\eta} - 1)(1 - e^{-2\pi\eta'})} \frac{d}{dx} |F(i\eta, i\eta', 1, x)|^2,$$

$$x = -\frac{4\eta\eta'}{(\eta' - \eta)^2} = -\frac{4vv'}{(v - v')^2}.$$

¹ SOMMERFELD, A.: Atombau und Spektrallinien, 2. Aufl., Bd. II, 7. Kap. Dort fehlt in der Formel für W_ν der Faktor $8\pi/3$.

Hierin sind v und v' die asymptotischen Geschwindigkeiten der Elektronen vor und nach dem Stoß, $\hbar k$ und $\hbar k'$ die entsprechenden Impulse; a_0 ist der Bohrsche Radius, F die hypergeometrische Funktion von vier Argumenten. Dem Wert $\eta' = \infty$ oder $v' = 0$, d.h. $x = 0$ entspricht die kurzwellige Grenze $\nu = \nu_K$.

Die numerische Berechnung der Funktion L ist wegen des Auftretens der Ableitung des Absolutquadrates der hypergeometrischen Funktion, von bestimmten Bereichen der unabhängigen Variablen abgesehen, nur mit einigem Aufwand möglich. In der letzten Zeit sind mehrere Arbeiten erschienen, die diese Berechnung zum Gegenstand haben. K. KUMMERER² hat Näherungsformeln abgeleitet, die die Berechnung von W_ν für $\eta \leq 5$ und für hinreichend kleine Werte von ν/ν_g , d.h. in genügendem Abstand von der kurzwelligen Grenze, mit geringer Mühe durchzuführen erlauben, und hat auch genaue Fehlergrenzen für seine Formeln angegeben. J.M. BERGER³ hat mit der UNIVAC eine Auswertung der strengen Formel (1) im Bereich von Anfangsenergien zwischen 0,4 und 730 eV und für Werte von ν/ν_g zwischen 0,01 bis 0,1 einerseits und 0,9 bis 0,95 andererseits (je nach der Anfangsenergie) vorgenommen. Seine Berechnung reicht also nicht bis zur kurzwelligen Grenze. Hier hilft nun eine Arbeit von TH. GUGGENBERGER⁴ weiter, der eine strenge, leicht auswertbare, allerdings nur genau an der kurzwelligen Grenze gültige Formel abgeleitet hat. Es bleibt dann zwar noch ein unbekanntes Gebiet zwischen den höchsten Frequenzen der Rechnung von BERGER und der kurzwelligen Grenze; doch kann man hier ohne wesentliche Unsicherheit interpolieren. Man hat also für kleine ν/ν_g die Werte von KUMMERER, für größere die Werte von KUMMERER und von BERGER, die, soweit sie sich decken, ausgezeichnet übereinstimmen, und für $\nu/\nu_g = 1$ die Werte von GUGGENBERGER.

In (1) kann der Faktor $L(\eta, \eta')$ als langsam veränderlich gegenüber dem Faktor η^2 betrachtet werden, wenn man von sehr kleinen Werten von ν/ν_g (d.h. $\eta' \simeq \eta$, $|x|$ groß) absieht. Daher ist W_ν nahezu proportional mit η^2 , d.h. mit $1/E$ (E = Anfangsenergie der Elektronen). W_ν durchläuft daher ebenso viele Größenordnungen wie E im umgekehrten Sinne. Um das genauere Verhalten von W_ν als Funktion von E und ν/ν_g darzustellen, ist es daher zweckmäßig $W_\nu \cdot E$ aufzutragen. Das ist in Fig. 1 unter der Annahme $Z = 1$ geschehen. Abszisse ist ν/ν_g in logarithmischer Skala, E ist Parameter und läuft von 1,3 eV bis 13 keV. Von einem konstanten Faktor abgesehen stellt diese Figur das Verhalten des Faktors $L(\eta, \eta')$ dar. Im allgemeinen steigt L mit wachsendem E und nähert sich einem Grenzwert, nur in der Nähe der kurzwelligen Grenze zeigt es

² KUMMERER, K.: Z. Physik **147**, 373 (1957).

³ BERGER, J.M.: Phys. Rev. **105**, 35 (1957).

⁴ GUGGENBERGER, TH.: Diss. T.H. München 1957. — Z. Physik **149**, 523 (1957).

ein anderes Verhalten. Hier steigt L mit E bis zu etwa 13 eV an ($L = 2$ für $\eta = 1$), dann nimmt es wieder ab und geht gegen 0 (vgl. GUGGENBERGER⁴), so daß in unserer Darstellung Schnittpunkte entstehen. Für $E \rightarrow 0$, also $\eta \rightarrow \infty$ wird

$$L = \frac{\pi}{\sqrt{3}} = 1,81 \quad (2)$$

unabhängig von η' . Dann wird

$$W_p = \frac{\pi}{\sqrt{3}} C \eta^2 = \frac{32\pi^2}{3\sqrt{3}} \frac{Z^2 e^6}{c^3 m^2 v^2}. \quad (3)$$

In diesem Grenzfall wird also W_p von ν unabhängig und streng der Anfangsenergie umgekehrt proportional. $W_p \cdot E$ ist konstant und wird

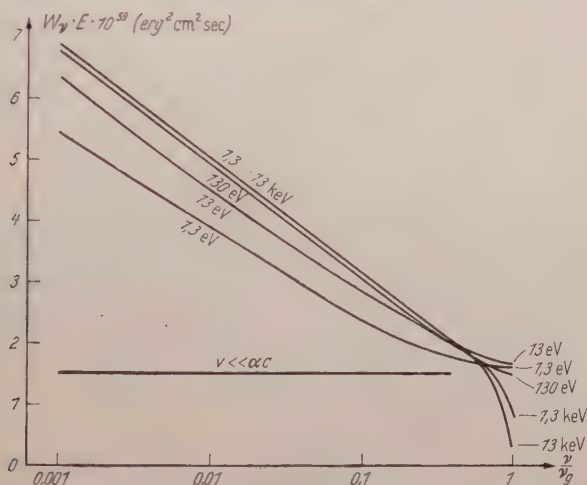


Fig. 1. Strahlungsleistung W_p mal Anfangsenergie E der Elektronen als Funktion der Frequenz für $Z = 1$. Dieselben Kurven stellen die Größe $L(\eta, \eta')$ dar ($W_p \cdot E = 8,40 \cdot 10^{-60} L$)

in Fig.1 durch die Parallele zur Abszissenachse dargestellt. Der für langsame Elektronen gültige Ausdruck (3) für W_p ist schon von SOMMERFELD¹ abgeleitet worden und wird als die „weiche Näherung“ bezeichnet. Die Bedingung für seine Gültigkeit ist

$$v \ll Z\alpha c \quad (4)$$

(α = Feinstrukturkonstante). Wie man aus Fig.1 nach Einsetzen von Zahlenwerten erkennt, ist die Bedingung (4) sehr ernst zu nehmen, um so mehr je kleiner ν/ν_g ist. In der Literatur wird die Näherung (3) vielfach in Fällen benutzt, wo sie kaum noch berechtigt ist.

Um nun den Emissionskoeffizienten eines homogenen isothermen Plasmas zu berechnen, müssen wir vom einzelnen Ion zur Volumeneinheit und vom homogenen Elektronenstrom zur Maxwell'schen Verteilung

übergehen. Ist N_e die Anzahl der Elektronen, dn_e ihre Anzahl im Energieintervall $E \dots E + dE$, N_i die der Ionen je Volumeneinheit, so ist der auf den Raumwinkel 4π bezogene Emissionskoeffizient

$$\begin{aligned} 4\pi \varepsilon_\nu &= N_i \int_0^{N_e} v W_\nu dn_e = C N_i \sqrt{\frac{2}{m}} \int_0^{N_e} \sqrt{E} \eta^2 L dn_e \\ &= \frac{16}{3} \frac{\sqrt{2\pi}}{c^3 m^{\frac{3}{2}}} \frac{Z^2 e^6}{c^3 m^{\frac{3}{2}}} N_i \int_0^{N_e} \frac{L dn_e}{\sqrt{E}}. \end{aligned}$$

Nun ist bei der Temperatur T und Maxwellscher Verteilung

$$dn_e = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{N_e}{(kT)^{\frac{3}{2}}} \sqrt{E} e^{-\frac{E}{kT}} dE,$$

also

$$4\pi \varepsilon_\nu = \frac{32}{3} \frac{\sqrt{2\pi}}{c^3} \frac{Z^2 e^6 N_i N_e}{(m k T)^{\frac{3}{2}}} \int_{h\nu}^{\infty} L e^{-\frac{E}{kT}} dE. \quad (5)$$

Da sich L als Funktion von E und ν nicht explizit angeben läßt, kann das Integral nur numerisch berechnet werden. Wegen der langsamen Veränderlichkeit von L mit E bekommt man einen guten Näherungswert des Integrals, wenn man L aus dem Integral herausnimmt und in L $E = \frac{1}{2}(h\nu + kT)$ für $h\nu < kT$ und $E = h\nu$ für $h\nu \geq kT$ einsetzt. Dann geht L in $\bar{L}(Z, \nu, T)$ über und es wird

$$4\pi \varepsilon_\nu = \frac{32}{3} \frac{\sqrt{2\pi}}{c^3} \frac{Z^2 e^6 N_i N_e}{m^{\frac{3}{2}} (kT)^{\frac{3}{2}}} \bar{L}(Z, \nu, T) e^{-\frac{h\nu}{kT}}. \quad (6)$$

Bei Maxwellscher Verteilung der Elektronengeschwindigkeiten tritt also an die Stelle der kurzwelligen Grenze ein exponentieller Abfall mit wachsender Frequenz, über den sich noch die Frequenzabhängigkeit von \bar{L} überlagert.

Aus dem Emissionskoeffizienten (6) des isothermen Plasmas kann man in bekannter Weise nach dem Kirchhoffschen Gesetz den Absorptionskoeffizienten α_ν berechnen. Es wird

$$\alpha_\nu = \frac{c^2}{2h\nu^3} (e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1) \varepsilon_\nu = \frac{4}{3} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{Z^2 e^6 N_i N_e}{c m^{\frac{3}{2}} h (kT)^{\frac{3}{2}}} \frac{\bar{L}(Z, \nu, T)}{\nu^3} (1 - e^{-\frac{h\nu}{kT}}). \quad (7)$$

Die Strahlungsleistung der Volumeneinheit für das gesamte Spektrum ergibt sich aus (6) durch Integration über ν

$$S = 4\pi \int_0^\infty \varepsilon_\nu d\nu = \frac{32}{3} \frac{\sqrt{2\pi}}{c^3} \frac{Z^2 e^6 N_i N_e}{m^{\frac{3}{2}} (kT)^{\frac{3}{2}}} \int_0^\infty \bar{L}(Z, \nu, T) e^{-\frac{h\nu}{kT}} d\nu. \quad (8)$$

Für die „weiche Näherung“ ($L = \pi/\sqrt{3}$) wird

$$\left. \begin{aligned} S &= \frac{32\pi}{3} \sqrt{\frac{2\pi}{3}} \frac{Z^2 e^6 N_i N_e (\hbar T)^{\frac{1}{2}}}{c^3 m^{\frac{3}{2}} \hbar} \\ &= 1,41 \cdot 10^{-27} Z^2 N_i N_e \sqrt{T} \text{ erg cm}^3 \text{ sec}^{-1} \text{ grad}^{-\frac{1}{2}}. \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

Dieser Wert wird z.B. von L. SPITZER⁵ angegeben. Da er auf der weichen Näherung beruht, trifft er für Plasmen hoher Temperatur nicht mehr zu. Auch die entsprechende Formel von R.F. POST⁶ stimmt mit (9) überein. Der Zahlenfaktor ergibt sich allerdings nach Umrechnung auf unsere Einheiten zu 1,59. Der hier für die gesamte Strahlungsleistung S berechnete genauere Wert (8) ist für $N_e = N_i = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ und $Z = 1$ in Fig. 2 zusammen mit dem Wert (9) aufgetragen. Man erkennt, daß die Abweichung der Formel (8) vom \sqrt{T} -Gesetz gering ist, daß man aber den Zahlenfaktor um etwa 30 bis 40% größer als in (9) anzusetzen hat.

Erfolgt die Ionisierung eines Gases rein thermisch, so folgen N_e und N_i aus der Saha-Formel. Ist N die ursprüngliche Zahl der Atome je cm^3 , so folgt für geringe Ionisierung ($N_e = N_i \ll N$)

$$4\pi \epsilon_\nu = \frac{16\alpha^3}{3\pi} \frac{\sigma_i \sigma_e}{\sigma_0} p e^{-\frac{U_{\text{eff}} + h\nu}{kT}} \bar{L}(Z, \nu, T), \quad (10)$$

$$\alpha_\nu = \frac{2\alpha^3}{3\pi^2} \frac{\sigma_i \sigma_e}{\sigma_0} \frac{c^2}{h\nu^3} p e^{-\frac{U_{\text{eff}}}{kT}} \left(1 - e^{-\frac{h\nu}{kT}}\right) \bar{L}(Z, \nu, T). \quad (11)$$

Hierin sind $\sigma_i, \sigma_e, \sigma_0$ die Zustandssummen für das Ion, das Elektron und das neutrale Atom; U_{eff} ist die effektive Ionisierungsspannung des Atoms im Plasma, die sich von derjenigen des isolierten Atoms unterscheidet (vgl. weiter unten).

2. Abweichungen vom Coulomb-Feld

Die bisherigen Betrachtungen sind im allgemeinen nicht ausreichend, um die Strahlungsemission und -absorption eines Plasmas zu berechnen,

⁵ SPITZER, L.: Physics of fully ionized Gases. New York 1956.

⁶ POST, R.F.: Rev. Mod. Phys. **28**, 338 (1956).

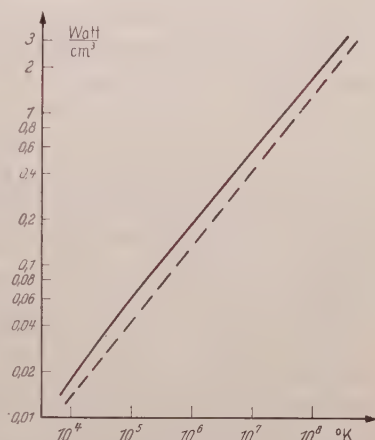


Fig. 2. Gesamte Strahlungsleistung eines Plasmas je cm^3 als Funktion der Temperatur für 10^{15} Ionen und Elektronen je cm^3 und für $Z = 1$, — genaue Werte; --- „weiche Näherung“ (\sqrt{T} -Gesetz). Der oberste Teil der Kurve entspricht Temperaturen, bei denen die Leistungs-dichte von Kernfusionsprozessen die Größenordnung der Strahlungsleistungsdichte erreicht

weil das Feld der Ionen als ein reines Coulomb-Feld betrachtet wurde. Wenn aber, klassisch gesprochen, die Elektronenbahnen in die Elektronenhülle des Ions eindringen, so hat man mit starken Abweichungen vom Coulomb-Feld zu rechnen, sofern die Elektronenhülle überhaupt durch ein statisches Feld ersetzt werden kann. Die quantentheoretische Berechnung der Bremsstrahlung für Nicht-Coulomb-Felder ist nur in einzelnen Fällen durchgeführt worden, für Ionen nur von GUGGENBERGER⁴. Seine Formeln lassen sich aber ohne großen Aufwand nur für sehr hohe Anfangsenergien auswerten.

Nun ist kürzlich von S.D. DRELL und K. HUANG⁷ gezeigt worden, daß man die quantentheoretischen Ausdrücke für die Energie der Bremsstrahlung nach Potenzen der Größe $v/v_g = \hbar v/E$ entwickeln kann und daß das absolute Glied dieser Entwicklung mit dem klassisch berechneten Ausdruck übereinstimmt. Das klassische Ergebnis weicht also von dem quantentheoretischen um so weniger ab, je kleiner v/v_g ist. Wenn man demnach in einiger Entfernung von der kurzwelligen Grenze bleibt, so stellt die klassische Theorie eine gute Näherung dar. Wir benutzen daher im folgenden die von H.A. KRAMERS⁸ und von G. WENTZEL⁹ entwickelte klassische Theorie zunächst dazu, um zu entscheiden, in welchen Bereichen von Energien und Frequenzen eine Korrektur wegen der Abweichungen vom Coulomb-Gesetz notwendig ist.

Wir bringen die klassische Theorie¹⁰ zunächst in eine Form, in der sie mit den quantentheoretischen Ergebnissen vergleichbar und zur numerischen Rechnung geeignet ist.

Es sei $\mathbf{r}(t)$ der Ortsvektor des Elektrons in bezug auf das Ion und

$$(\ddot{\mathbf{r}})_{\omega} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \ddot{\mathbf{r}}(t) e^{i\omega t} dt \quad (12)$$

die Fourier-Amplitude der Kreisfrequenz ω . Stellt man die Hyperbelbewegung des Elektrons durch

$$\left. \begin{aligned} x &= a(\cosh \xi - \varepsilon), & y &= a\sqrt{\varepsilon^2 - 1} \sin \xi, \\ \omega_0 t &= \varepsilon \sin \xi - \xi, & \omega_0 &= \sqrt{\frac{Ze^2}{ma^3}} = \frac{v}{a} \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

⁷ DRELL, S.D., u. K. HUANG: Phys. Rev. **99**, 686 (1955).

⁸ KRAMERS, H.A.: Phil. Mag. **46**, 836 (1923).

⁹ WENTZEL, G.: Z. Physik **27**, 257 (1924).

¹⁰ Vgl. auch LANDAU, L., u. E. LIFSHITZ: Classical Theory of Fields. Cambridge: Addison Wesley Press 1951. Die entsprechende Rechnung ist in dieser Darstellung nicht durchweg überzeugend durchgeführt.

dar ($a = \frac{Ze^2}{2k}$ — Halbachse, ε — Exzentrizität, $\varepsilon \geq 1$), so treten bei der Berechnung von $(\ddot{r})_\omega$ die folgenden Integrale auf

$$\left. \begin{aligned} J_{\mathfrak{E}} &= \int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{C} \cos \xi e^{i \frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \sin \xi - \xi)} d\xi, \\ J_{\mathfrak{S}} &= \frac{1}{i} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{S} \sin \xi e^{i \frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \sin \xi - \xi)} d\xi. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Nun ist

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\mathfrak{C} \cos \xi + \frac{1}{\varepsilon} \right) e^{i \frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \sin \xi - \xi)} d\xi = \lim_{\xi \rightarrow \infty} 2 \sin \left| \frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \sin \xi - \xi) \right|.$$

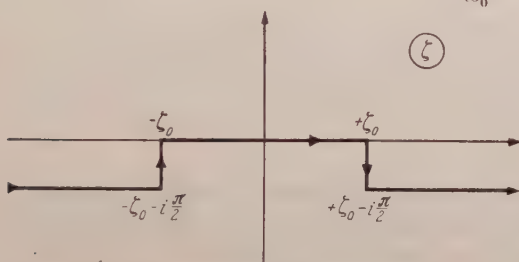


Fig. 3. Integrationsweg in der ζ -Ebene

Dieser Grenzwert existiert zwar für ein festes ω nicht; integriert man aber über ein beliebig kleines Frequenzintervall, so existiert der Grenzwert und verschwindet. Daher können wir setzen

$$J_{\mathfrak{E}} = \frac{1}{\varepsilon} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i \frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \sin \xi - \xi)} d\xi = \frac{1}{\varepsilon} J.$$

Ferner ist

$$J_{\mathfrak{S}} = - \frac{1}{\omega} \frac{dJ}{d\varepsilon}.$$

Setzt man im Integral J $\xi = \zeta + i \frac{\pi}{2}$, so wird

$$J = e^{\frac{\pi}{2} \frac{\omega}{\omega_0}} \int_{-\infty - i \frac{\pi}{2}}^{+\infty - i \frac{\pi}{2}} e^{-\frac{\omega}{\omega_0} (\varepsilon \mathfrak{C} \cos \zeta + i \zeta)} d\zeta.$$

Der Integrationsweg, der zunächst parallel zur reellen Achse der ζ -Ebene im Abstände $-i \frac{\pi}{2}$ verläuft, kann auf die reelle Achse verschoben werden. Man erkennt das, wenn man zunächst den in Fig. 3 angedeuteten

Weg wählt und dann die beiden zur imaginären Achse parallelen Strecken ins Unendliche rücken läßt. Ihr Beitrag geht dann wegen $\varepsilon \frac{\omega}{\omega_0} > 0$ gegen 0. Schließlich wird also

$$J = 2e^{\frac{\pi}{2} \frac{\omega}{\omega_0}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{\omega}{\omega_0} \varepsilon \mathfrak{U} \mathfrak{O} \mathfrak{I} \zeta} \cos\left(\frac{\omega}{\omega_0} \zeta\right) d\zeta \quad (15)$$

und damit

$$\left. \begin{aligned} J_{\mathfrak{C}} &= \frac{2}{\varepsilon} e^{\frac{\pi}{2} \frac{\omega}{\omega_0}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{\omega}{\omega_0} \varepsilon \mathfrak{U} \mathfrak{O} \mathfrak{I} \zeta} \cos\left(\frac{\omega}{\omega_0} \zeta\right) d\zeta, \\ J_{\mathfrak{S}} &= 2e^{\frac{\pi}{2} \frac{\omega}{\omega_0}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{\omega}{\omega_0} \varepsilon \mathfrak{U} \mathfrak{O} \mathfrak{I} \zeta} \mathfrak{U} \mathfrak{O} \mathfrak{I} \zeta \cos\left(\frac{\omega}{\omega_0} \zeta\right) d\zeta. \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

Die Integrale $J_{\mathfrak{C}}$ und $J_{\mathfrak{S}}$ hängen aufs engste mit der Hankel-Funktion $H^{(1)}$ und ihrer Ableitung $H^{(1) \prime}$ zusammen und zwar ist

$$J_{\mathfrak{C}} = \frac{i\pi}{\varepsilon} H_{i\frac{\omega}{\omega_0}}^{(1)}\left(i\frac{\omega}{\omega_0} \varepsilon\right), \quad J_{\mathfrak{S}} = \pi H_{i\frac{\omega}{\omega_0}}^{(1) \prime}\left(i\frac{\omega}{\omega_0} \varepsilon\right). \quad (17)$$

Da jedoch für die Berechnung von Hankel-Funktionen mit rein imaginärem Index keine allgemein gültigen Reihenentwicklungen zu existieren scheinen, wurde die numerische Berechnung auf Grund der Integraldarstellungen (16) durchgeführt. Dies ist mit geringem Rechenaufwand möglich, da die Integranden mit wachsendem ζ sehr schnell verschwindend klein werden.

Mit Hilfe dieser Integrale wird nach (12)

$$|(\ddot{\mathbf{r}})_{\omega}|^2 = \frac{a^2 \omega^2}{4\pi^2} \{J_{\mathfrak{S}}^2 + (\varepsilon^2 - 1) J_{\mathfrak{C}}^2\}.$$

Ist $s_{\omega} d\omega$ die bei einem einzelnen Stoßvorgang im Intervall $\omega \dots \omega + d\omega$ emittierte Strahlungsenergie, so wird

$$s_{\omega} = \frac{8\pi e^2}{3c^3} |(\ddot{\mathbf{r}})_{\omega}|^2 = \frac{2a^2 \omega^2 \varepsilon^2}{3\pi c^3} \{J_{\mathfrak{S}}^2 + (\varepsilon^2 - 1) J_{\mathfrak{C}}^2\}. \quad (18)$$

Wir betrachten nun wieder einen homogenen Elektronenstrom von 1 Elektron je cm^2 und sec, den wir in Kreiszyylinder vom Querschnitt $2\pi \varrho d\varrho$ einteilen (ϱ = Stoßparameter). An Stelle des Drehimpulses $D = m \varrho v$ der Elektronen in bezug auf das Ion führen wir, um den Vergleich mit den quantentheoretischen Ergebnissen zu erleichtern, die Drehimpulszahl $l = D/\hbar$ ein. Es sei nun $S_{\omega, l} d\omega dl$ die Strahlungsleistung im Frequenzbereich $\omega \dots \omega + d\omega$ und im Drehimpulsbereich $l \dots l + dl$, so wird

$$S_{\omega, l} = s_{\omega} \cdot 2\pi \varrho \frac{d\varrho}{dl} = C_{kl} l \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 \{J_{\mathfrak{S}}^2 + (\varepsilon^2 - 1) J_{\mathfrak{C}}^2\}, \quad (19)$$

worin

$$C_{kl} = \frac{4\hbar^2 c^2}{3c^3 m^2} = 1,52 \cdot 10^{-50} \text{ erg cm}^2 \text{ sec}$$

ist und die Exzentrizität

$$\varepsilon = \sqrt{1 + \frac{a^2}{a^2}} = \sqrt{1 + \frac{2E}{m} \left(\frac{\hbar l}{Ze^2} \right)^2}$$

durch E, Z und l ausgedrückt werden kann. Damit läßt sich die Strahlungsleistung $S_{\omega,l}$ als Funktion von E, Z, l und ω berechnen. Die Größe

$$W_{\omega}^{(kl)} = \int_0^{\infty} S_{\omega,l} dl \quad (20)$$

gibt die klassisch berechnete Strahlungsleistung eines Elektronenstroms von der Dichte 1 für beliebiges E, Z und ω je Frequenzeinheit. $W_{\omega}^{(kl)}$ wurde für einige Energien und Frequenzen mit der entsprechenden quantentheoretischen Größe $W_{\omega} - \frac{1}{2\pi} W_{\nu}$ verglichen. Es zeigte sich eine gute Übereinstimmung und zwar nicht nur bei kleinen Werten von ν/ν_g ; z.B. erreicht die Abweichung bei $E=0,8 \text{ eV}$ selbst für $\nu/\nu_g=0,5$ erst etwa 15%.

Man kann ferner, wie hier nicht näher ausgeführt werden soll, die Anfangsneigung der Kurve für $S_{\omega,l}$ als Funktion von l , also die Größe

$$\left(\frac{\partial S_{\omega,l}}{\partial l} \right)_{l=0} = C_{kl} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^2 (J\mathfrak{E})_{\varepsilon=1}^2 \quad (21)$$

unter gewissen Bedingungen mit den entsprechenden quantentheoretischen Ergebnissen vergleichen, indem man den Differentialquotienten (21) durch den Differenzenquotienten ersetzt, und erhält gute Übereinstimmung.

Diese Ergebnisse rechtfertigen die Verwendung der klassischen Rechnung auch bei größeren Frequenzen zu Abschätzungen über die an den quantentheoretischen Formeln notwendigen Korrekturen.

Fig. 4 gibt die Kurven für $S_{\omega,l}$ für $E=0,8 \text{ eV}$ und vier verschiedene Frequenzen. Während für die kleinste Frequenz ($\nu/\nu_g=0,005$) die Drehimpulszahlen l der zur Strahlung wesentlich beitragenden Bahnen von 0 bis etwa 200 laufen, verschiebt sich dieser Bereich mit wachsender Frequenz nach kleineren l ; für $\nu/\nu_g=0,9$ sind nur noch Bahnen mit $l=0$ bis 7 maßgebend.

Die für höhere Elektronenenergien E gültigen Kurven sollen hier nicht wiedergegeben werden. Sie zeigen, daß sich mit wachsendem E der Schwerpunkt der Ausstrahlung immer mehr nach kleinen Drehimpulszahlen l verschiebt, daß Erhöhung der Energie also ebenso wirkt wie Annäherung an die kurzwellige Grenze. Das genauere Verhalten

von $S_{\omega,l}$ geht aus der weiter unten zu besprechenden Fig. 5 hervor. Auch diese Ergebnisse über die maßgebenden Drehimpulszahlen l sind in Übereinstimmung mit einem quantentheoretischen Ergebnis von GUGGENBERGER⁴, nämlich mit den Konvergenzeigenschaften der von ihm abgeleiteten nach wachsenden Drehimpulsquantenzahlen fortschreitenden Reihe [seine Formel (17)].

Da durch E und l eine bestimmte Hyperbelbahn und damit auch ihr Perihelabstand festgelegt ist, kann man ohne weiteres angeben, welche Bahnen in ein Ion von gegebenem Radius eindringen oder für welche

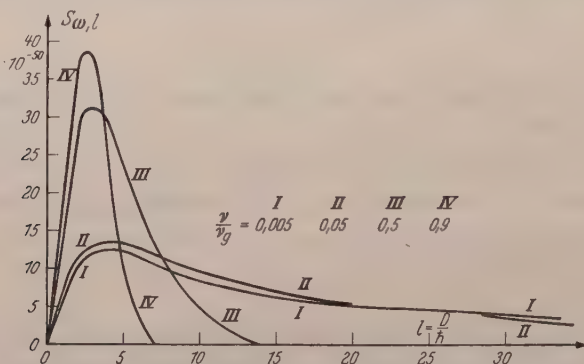


Fig. 4. Strahlungsleistung je Frequenz- und Drehimpulseinheit für die Elektronenenergie $E = 0,8$ eV und $Z = 1$ für verschiedene Frequenzen als Funktion des Drehimpulses

Bahnen die für die Ausstrahlung wesentliche Bahnstrecke eine Entfernung vom Ion erreicht, die etwa der Hälfte des mittleren Abstandes zweier Ionen entspricht. Damit zerfällt für gegebene Ionen und für eine gegebene Plasmadichte die von der $S_{\omega,l}$ -Kurve und der Abszissenachse begrenzte Fläche in drei Teile F_0 , F und F_1 , wobei F demjenigen Bereich entsprechen soll, in dem mit dem Coulombschen Gesetz gerechnet werden kann, während für F_0 eine Korrektur wegen des Eindringens der Bahnen (Tauchkorrektur) und für F_1 eine Korrektur wegen des Einflusses der Nachbarionen (Dichtekorrektur) nötig ist. Nur wenn F_0 und $F_1 \ll F$ sind, ist keine Korrektur der Ergebnisse erforderlich.

In welchen Bereichen von Elektronenenergien und Frequenzen auf Grund dieser Betrachtung Korrekturen angebracht werden müssen, ist aus Fig. 5 zu ersehen. Hier sind folgende Perihelabstände r_{\min} als Funktion der Energie oder der Temperatur aufgetragen:

1. Mit der Bezeichnung „Maximum der Strahlungsleistung“ diejenigen Perihelabstände, für die die $S_{\omega,l}$ -Kurve ihr Maximum erreicht,
2. mit der Bezeichnung „minimaler Perihelabstand“ diejenigen Abstände, unterhalb deren nur noch 5 % der gesamten Strahlungsleistung liegen, und schließlich

3. mit der Bezeichnung „maximaler Perihelabstand“ diejenigen Abstände oberhalb deren keine wesentliche Strahlungsleistung mehr vorhanden ist.

Alle Kurven gelten für $v/v_g \ll 1$; während aber die unter 1. und 2. genannten Perihelabstände für kleine v/v_g von dieser Größe unabhängig sind, hängen die „maximalen Perihelabstände“ von v/v_g ab und werden daher durch verschiedene Kurven mit v/v_g als Parameter wiedergegeben.

Man ersieht aus Fig. 5 z.B., daß für $E \cong 1$ eV die Tauchkorrektur zu berücksichtigen ist, die Dichtekorrektur dagegen bei 10^{15} Ionen je cm^3 nicht. Für größere Energien wird die Tauchkorrektur immer wesentlicher, bis schließlich die Elektronenhülle kaum noch eine Rolle spielt und das unabgeschirmte Kernfeld wirksam ist. Selbst für kleine Ionendichten wie sie in den Sternatmosphären vorkommen, macht sich bei sehr kleinen Werten von v/v_g (Radiowellen) der Einfluß der Nachbarionen bemerkbar. In Fig. 5 ist durch Punkte ein Beispiel angedeutet,

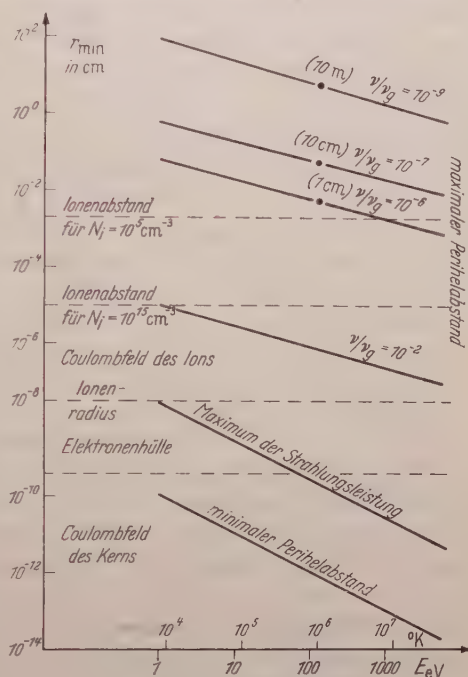


Fig. 5. Perihelabstände r_{\min} der Elektronenbahnen als Funktion der Energie E

das bei der Sonnenkorona vorliegt: Temperatur 10^6 °K, Ionendichte 10^8 cm^{-3} , Beobachtung bei 1 cm bis 10 m Wellenlänge. Für diesen Fall wurde die notwendige Korrektur schon von G. BURKHARDT, G. ELWERT, A. UNSÖLD¹¹ auf einem Wege berechnet, der von dem hier eingeschlagenen nicht wesentlich verschieden ist.

Den Einfluß der Nachbarionen kann man in erster Näherung dadurch berücksichtigen, daß man den auf die Fläche F_1 entfallenden Bruchteil der Strahlungsleistung einfach fortläßt. Wenn man nämlich diejenige Strahlung berechnet, die nicht auf einer vollen Hyperbelbahn sondern einem beliebigen Teilstück ausgesandt wird, so findet man, daß der größte Teil der Strahlung in Entfernungen vom Ion emittiert wird, die

¹¹ BURKHARDT, G., G. ELWERT u. A. UNSÖLD; Z. Astrophys. **25**, 310 (1948).

von derselben Größenordnung wie der Perihelabstand sind. Man macht also keinen großen Fehler, wenn man nur diejenigen Bahnen berücksichtigt, deren Perihelabstand kleiner als der halbe mittlere Ionenabstand ist, und die anderen Bahnen den Nachbarionen zurechnet.

Die Tauchkorrektur kann man folgendermaßen abschätzen. Man berechnet ein Thomas-Fermi-Modell für das betreffende Ion und sein Potential, sowie die Elektronenbahnen im Innern des Ions für die in Frage kommenden Energien und Drehimpulse*. Man denkt sich dann das Ion in konzentrische Kugelschalen zerlegt und approximiert das Feld in jeder Schale durch ein Coulomb-Feld mit einer geeigneten effektiven Kernladungszahl. Mittelt man dann quadratisch über die effektiven Kernladungszahlen der einzelnen Schalen unter Berücksichtigung der Aufenthaltsdauer des Elektrons in jeder Schale, so erhält man eine gemittelte effektive Kernladungszahl \bar{Z}_{eff} , die von E und l abhängt. Damit bekommt man im Gebiet der eindringenden Bahnen eine korrigierte $S_{\omega,l}$ -Kurve und eine korrigierte Fläche F'_0 , die an Stelle der Fläche F_0 bei der Berechnung von $W_{\omega}^{(k,l)}$ zu benutzen ist.

Natürlich ist dieses rohe Verfahren nur sinnvoll, wenn die sich ergebende Korrektur relativ klein ist.

3. Anwendungsbeispiel

Wir betrachten nun als Anwendungsbeispiel die kontinuierliche Emission und Absorption des Hg-Hochdruckbogens im Ultrarot. Eine vorläufige Theorie dieses Spektrums wurde schon vor einigen Jahren vom Verfasser^{12, 13} entwickelt. Während aber die damals vorliegenden experimentellen Untersuchungen in bezug auf den Absolutwert der Strahlungsleistung nur als Schätzungen bezeichnet werden konnten, sind neuerdings im Ultrarotspektrum des Hg-Bogens absolute Strahlungsmessungen von J. BOHDANSKY¹⁴ ausgeführt worden, so daß jetzt die Durchführung einer genaueren Berechnung auf Grund der hier abgeleiteten Formeln für den Emissionskoeffizienten ϵ_v und Absorptionskoeffizienten α_v eines isothermen Plasmas lohnend erscheint.

Allerdings sind für den von BOHDANSKY untersuchten wandstabilisierten Bogen die Achsentemperatur und die Querschnittsverteilung der Temperatur nicht genau bekannt. Da der Bogen aber in seinen Daten, vom Gasdruck abgesehen, dem UV-Standard von OSRAM ähnlich ist, wurden dessen Daten (vgl. ¹²) der folgenden Rechnung zugrunde gelegt. Mit Hilfe der Formeln (10) und (11) wurden ϵ_v und α_v als Funktion des Abstandes r ($-R \leq r \leq +R$) von der Bogenachse berechnet. Daraus

* Für das im folgenden Beispiel behandelte Hg^+ -Ion wurden diese Rechnungen von Herrn Dipl.-Phys. J. BRUNNER durchgeführt.

¹² HETTNER, G.: Z. Physik **131**, 385 (1952).

¹³ HETTNER, G.: Z. angew. Phys. **6**, 209 (1954).

¹⁴ BOHDANSKY, J.: Z. Physik **149**, 383 (1957).

folgt dann für Strahlen, die die Bogenachse senkrecht durchsetzen, die Durchlässigkeit D und das Absorptionsvermögen A des Bogens

$$D_{-R}^{+R} = e^{-\int_{-R}^{+R} \alpha_p(r) dr}, \quad A_{-R}^{+R} = 1 - D_{-R}^{+R}$$

und sein Emissionsvermögen (bezogen auf die Flächen- und Raumwinkleinheit)

$$\mathfrak{R}_v = \int_{-R}^{+R} \epsilon_p(r) D_r^R dr.$$

Das Ergebnis für das Spektralgebiet von 2 bis 500 μ Wellenlänge oder $\nu = 6 \cdot 10^{11}$ bis $1,5 \cdot 10^{14} \text{ sec}^{-1}$ wird durch die gestrichelte Kurve in Fig. 6 wiedergegeben.

Die Tauchkorrektur wurde in der oben angegebenen Weise berechnet. Das Emissionsvermögen erhöht sich durch diese Korrektur um so mehr,

je höher die Frequenz ist. Die ausgezogene Kurve in Fig. 6 stellt das Ergebnis einschließlich der Tauchkorrektur dar.

Für das Emissionsvermögen \mathfrak{R}_v ergibt sich also in der Frequenzskala ein Maximum in der Gegend von $\nu = 5 \cdot 10^{12} \text{ sec}^{-1}$ (60 μ), das folgendermaßen zustande kommt: Geht man von hohen zu niedrigen Frequenzen, so steigt das Emissionsvermögen zunächst an, weil für einen immer größeren Bruchteil von Elektronen die kurzwellige Grenze unterschritten wird. Da das Absorptionsvermögen aber ebenfalls wächst, so tritt eine wesentliche Selbstabsorption ein. Infolgedessen stammt die nach außen gelangende Strahlung nicht mehr aus den achsennahen, heißesten Teilen des Bogens, sondern hat ihren Ursprung in achsenferneren kälteren Schichten. Das Emissionsvermögen sinkt daher mit weiter abnehmender Frequenz wieder ab.

Bezieht man aber das Emissionsvermögen auf die Wellenlängenskala, wie es in ¹² geschah, so bekommt man im langwelligen Ultrarot kein Maximum, sondern einen monotonen Anstieg mit wachsender Frequenz bis zu der Gegend, in der $h\nu \cong kT$.

In diese Ergebnisse geht wesentlich die effektive Ionisierungsspannung U_{eff} im Plasma ein. Über diese Größe werden in der Literatur verschiedene Ansichten geäußert. Zuletzt wurde die Frage nach der

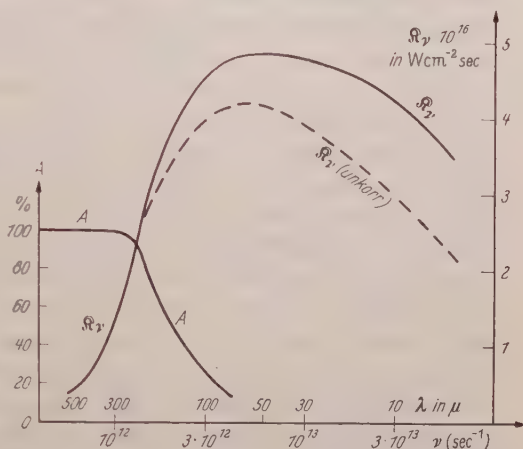


Fig. 6. Emissionsvermögen \mathfrak{R}_v und Absorptionsvermögen A des Hg-Bogens im UV-Standard als Funktion der Frequenz oder Wellenlänge

Bedeutung und dem Wert von U_{eff} von G. ECKER und W. WEIZEL¹⁵, O. THEIMER¹⁶ und W. GÖING, H. MEIER, H. MEINEN¹⁷ diskutiert. Der Verfasser ist der Meinung, daß eine scharfe Grenze überhaupt nicht sehr sinnvoll ist und hofft, auf diese Frage an anderer Stelle zurückzukommen. Hier wurde in Übereinstimmung mit¹⁷ $U_{\text{eff}} = 9,4 \text{ eV}$, also 1 eV unter der Ionisierungsgrenze des freien Atoms angesetzt, entsprechend der Tatsache, daß die höchsten Terme des Hg-Atoms bis zu dieser Grenze so dicht liegen, daß ihre Verschmierung zu einem Kontinuum unter den hier vorliegenden Bedingungen angenommen werden kann.

Diese schwer übersehbare Beeinflussung der Ionisierung durch die elektrischen Mikrofelder im Plasma bringt eine gewisse Unsicherheit in die Berechnung von ε_ν und α_ν . Wenn man überhaupt mit einer Ionisierungsgrenze rechnet so hängt diese zweifellos von Druck und Temperatur ab. Da nun U_{eff} im Exponenten eingeht [Formeln (10) und (11)] kann diese Abhängigkeit einen erheblichen Einfluß auf den Verlauf von ε_ν und α_ν mit Druck und Temperatur haben. Es wird z. B. bei 6000° K durch eine Herabsetzung von U_{eff} um $0,35 \text{ eV}$ bereits eine Verdoppelung von ε_ν und α_ν bewirkt. Dieser Einfluß ist unabhängig von der Frequenz und muß sich sowohl bei dem hier behandelten Bremskontinuum wie bei den Rekombinationskontinua bemerkbar machen. Vielleicht ist hieraus die Tatsache zurückzuführen, daß nach den Messungen von BOHDANSKY die Ultrarotstrahlung mit dem Druck stärker als druckproportional ansteigt, wie es nach (10) und (11) sein müßte, wenn man U_{eff} als eine Konstante ansieht.

Ein Vergleich unserer in Fig. 6 dargestellten theoretischen Ergebnisse mit den Messungen von BOHDANSKY (seine Fig. 10) zeigt, daß nicht nur die Größenordnung des Emissionsvermögens von der Theorie richtig wiedergegeben wird, sondern auch der allgemeine Verlauf der Kurve. Daß die berechnete Kurve gegen die beobachtete nach höheren Frequenzen verschoben erscheint [Maximum bei $5 \cdot 10^{12} \text{ sec}^{-1}$ (60μ) statt $2,8 \cdot 10^{12} \text{ sec}^{-1}$ (107μ)] erklärt sich ohne weiteres daraus, daß der Rechnung das UV-Standard und damit ein Druck von $1,5 \text{ at}$ zugrunde liegt, die Beobachtungen aber bei 700 Torr , also etwa dem halben Druck, gemacht wurden. Wie aus (11) hervorgeht ist α_ν für $h\nu \ll kT$ mit p/ν proportional. Die Selbstabsorption wird also bei kleinerem Druck auch erst bei kleineren Frequenzen merklich werden und der Abfall von α_ν daher erst bei kleineren Frequenzen beginnen.

Eine genaue Übereinstimmung ist nicht zu erwarten wegen der Ungenauigkeit der Tauchkorrektur und wegen der Unsicherheit über die Ionisierungsgrenze einerseits, und wegen der Unkenntnis über die genaue

¹⁵ ECKER, G., u. W. WEIZEL: Ann. Physik **17**, 126 (1956).

¹⁶ THEIMER, O.: Z. Naturforsch. **12a**, 518 (1957).

¹⁷ GÖING, W., H. MEIER u. H. MEINEN: Z. Physik **140**, 376 (1955).

Temperaturverteilung im Bogen und der Fehlergrenzen der Beobachtung andererseits, die im langwelligen Teil des Spektrums erheblich sind. Bei den höheren Frequenzen können sich auch schon Rekombinationskontinua oder verbreiterte Linien bemerkbar machen, die hier nicht berücksichtigt sind.

Auch das Einsetzen eines stärkeren Absorptionsvermögens in der Gegend von $3 \cdot 10^{12} \text{ sec}^{-1}$ (100μ) wird durch die Messungen von BOHDANSKY und durch frühere Messungen bestätigt.

Es kann also wohl kein Zweifel bestehen, daß das Spektrum des Hg-Hochdruckbogens im langwelligeren Teil des Ultrarots im wesentlichen ein Elektronenkontinuum ist. Andere Emissionsträger, wie Quasimoleküle, die von F. RÖSSLER¹⁸ vor allem zur Deutung des Maximums im langwelligen Ultrarot herangezogen werden, können nur einen kleinen Bruchteil zur Emission beitragen. Eine Berechnung der spektralen Energieverteilung oder des Absolutwertes des Emissionsvermögens liegt für Quasimoleküle nicht vor. Eine Abschätzung¹⁹ ergibt Werte, die mehrere Zehnerpotenzen kleiner sind als die beobachteten. In der Tat ist das von BOHDANSKY im langwelligen Ultrarot gefundene Maximum so flach, daß es bei der Umrechnung auf die Wellenlängenskala verschwindet. In dieser Skala ergeben die Messungen einen monotonen Anstieg mit abnehmender Wellenlänge. Auch aus den älteren Messungen von B. KOCH²⁰ und W. DAHLKE²¹ kann das Auftreten eines bandenartigen Maximums, wie es von F. RÖSSLER angenommen wird, nicht gefolgert werden, weil die starke Absorption der Strahlung durch die Quarzwand der Lampe nicht mit genügender Genauigkeit berücksichtigt werden kann.

Es liegen ferner absolute Strahlungsmessungen von H. MAECKER und T. PETERS²² am 200 Amp-Kohlebogen vor, dessen Daten gut bekannt sind. Die Meßpunkte liegen im sichtbaren Gebiet und im UV. Hier wird die Tauchkorrektur, bzw. die effektive Kernladungszahl recht groß und ihre Bestimmung daher auf dem eingeschlagenen Wege unsicher. Ein Vergleich mit den Meßergebnissen erfordert eine Theorie, die das Innere der Ionen in strengerer Weise berücksichtigt.

Für vollständig ionisierte Gase ist dagegen die hier entwickelte Theorie völlig streng. Es gelten für den spektralen Emissions- und Absorptionskoeffizienten die Formeln (5) bis (7) ohne Korrektur und ebenso die Formel (8) für die Gesamtstrahlung, deren Verlauf durch die Fig. 2 wiedergegeben wird.

¹⁸ RÖSSLER, F.: Z. Physik **139**, 56 (1954).

¹⁹ WESTPFAHL, K.: Z. Physik **140**, 414 (1955).

²⁰ KOCH, B.: Ann. Phys. **33**, 335 (1938).

²¹ DAHLKE, W.: Z. Physik **114**, 205, 672 (1940); **115**, 1 (1940).

²² MAECKER, H., u. T. PETERS: Z. Physik **139**, 448 (1954).

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Hamburg

Der Einfluß der Elektronenpolarisation auf den Wirkungsquerschnitt für Paarvernichtung im Fluge

Von

W. R. THEIS

(Eingegangen am 15. Juni 1957)

Es wird die Spinabhängigkeit der Paarvernichtung im Fluge berechnet, die eine Möglichkeit zur Messung des Positronenspins gibt.

Nachdem sich gezeigt hat, daß die schwachen Wechselwirkungen gegenüber Raumpiegelung und Ladungskonjugation nicht invariant sind, ist es wichtig geworden, auch den Polarisationszustand von Positronen zu untersuchen. Im folgenden soll der differentielle Wirkungsquerschnitt für Paarvernichtung im Fluge für beliebige Spinrichtungen von Positron und Elektron explizit angegeben werden¹.

Im Anfangszustand liegen ein freies Positron und ein freies Elektron (Impuls \vec{p}_+ und \vec{p}_-) vor, im Endzustand zwei Photonen (Impulse \vec{k} und \vec{k}'). Als Bezugssystem werde das Massenmittelpunktsystem gewählt. Dann gilt

$$\vec{p}_+ = -\vec{p}_-, \quad \vec{k} = -\vec{k}', \quad p^2 = \varepsilon^2 - m^2, \quad \vec{k}^2 = \varepsilon^2, \quad p \equiv |\vec{p}_+|$$

$$\beta = p/\varepsilon, \quad \gamma = \varepsilon/m, \quad p \cdot \varepsilon \cdot \cos \Theta = (\vec{k} \vec{p}_+), \quad \Phi \equiv \text{Azimut von } \vec{k} \text{ um } \vec{p}_+.$$

Die Spinzustände von Positron und Elektron werden durch die Angabe der Richtung vollständig gekennzeichnet, in die der Spin im Grenzfall kleiner Geschwindigkeiten weist. Diese Richtungen seien für Positron bzw. Elektron durch Polarwinkel ϑ , φ bzw. $\bar{\vartheta}$, $\bar{\varphi}$ mit den jeweiligen Impulsen als positiven Achsen beschrieben. Der Zustand $\vartheta=0$, $\bar{\vartheta}=\pi$ wird auch durch $(+-)$ abgekürzt [entsprechend $(++)$, $(--)$, $(-+)$].

Lineare Polarisation des Photons (\vec{k}) in der $\{\vec{k}, \vec{p}_+\}$ -Ebene bzw. senkrecht dazu wird durch \parallel bzw. \perp bezeichnet, rechts- bzw. links-

¹ Inzwischen erschien eine Arbeit von L. A. PAGE [Phys. Rev. **106**, 394 (1957)], in der die wesentlichen Ergebnisse teils implizit enthalten sind. Da dort jedoch nur spezielle Polarisationszustände von Positron und Elektron betrachtet werden, geben die Rechnungen hier vielleicht eine nützliche Ergänzung.

zirkulare durch R bzw. L . In der Bezeichnung $\parallel \perp$ bezieht sich das erste Zeichen auf das Photon vom Impuls \vec{k} , das zweite auf das vom Impuls \vec{k}' .

Für den Wirkungsquerschnitt erhält man in niedrigster Ordnung²

$$d\sigma = r_0^2 \frac{d\Omega}{4\beta\gamma^4 [1 - \beta^2 \cos^2 \Theta]^2} |M|^2, \quad r_0 = \frac{e^2}{4\pi mc^2}, \quad (1)$$

$$M = \frac{1}{2\varepsilon^3} \bar{v}(\vec{p}_+) [\mathbf{e}'(i\mathbf{p}_- - i\mathbf{k} - m) \mathbf{e} \mathbf{p}_- \cdot \mathbf{k}' + \mathbf{e}(i\mathbf{p}_- - i\mathbf{k}' - m) \mathbf{e}' \mathbf{p}_- \cdot \mathbf{k}] u(\vec{p}_-),$$

\mathbf{e}, \mathbf{e}' = Polarisationsrichtungen der Photonen

$$\mathbf{p} = \not{p} \gamma_\mu, \quad \gamma_\mu \gamma_\nu + \gamma_\nu \gamma_\mu = 2g_{\mu\nu}$$

$$\bar{v}(\vec{p}_+) = \cos \frac{\vartheta}{2} e^{i\tilde{\varphi}/2} \bar{v}_+(\vec{p}_+) - \sin \frac{\vartheta}{2} e^{-i\tilde{\varphi}/2} \bar{v}_-(\vec{p}_+) \quad \tilde{\varphi} = \varphi - \Phi,$$

$$u(\vec{p}_-) = \cos \frac{\bar{\vartheta}}{2} e^{i\tilde{\bar{\varphi}}/2} u_+(\vec{p}_-) + \sin \frac{\bar{\vartheta}}{2} e^{-i\tilde{\bar{\varphi}}/2} u_-(\vec{p}_-) \quad \tilde{\bar{\varphi}} = \bar{\varphi} + \Phi.$$

Für spezielle Photonen- und Positron-Elektron-Polarisation hat M folgende Gestalt:

	$\parallel \parallel$	$\perp \perp$	$\parallel \perp$	$\perp \parallel$	RR	LL	RL	LR
$(++) + (--)$	0	0	im_1	im_1	m_1	$-m_1$	0	0
$(++) - (--)$	$m_2 + m'_2$	$-m_2 + m'_2$	0	0	m_2	m_2	m'_2	m'_2
$(+-) + (-+)$	m_3	m_3	0	0	0	0	m_3	m_3
$(+-) - (-+)$	0	0	$-im_4$	im_4	0	0	$-m_4$	m_4

$(++) + (--)$ steht für die halbe Summe der Zustände $(++)$ und $(--)$. Diese Kombinationen sind Eigenzustände zu CP (C = Ladungskonjugation, P = Raumspiegelung).

$$\left. \begin{aligned} m_1 &= 1, & m_2 &= \beta, & m'_2 &= \beta \sin^2 \Theta, & m_3 &= \beta \gamma \sin \Theta \cos \Theta, \\ & & m_4 &= \beta \gamma \sin \Theta. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Daraus erhält man

$$\left. \begin{aligned} |M|_{\parallel \parallel}^2 &= (m_2 \pm m'_2)^2 a_2 + m_3^2 a_3 + 2(m'_2 \pm m_2) m_3 a_{23} \\ |M|_{\perp \perp}^2 &= m_1^2 a_1 + m_4^2 a_4 \pm 2m_1 m_4 a_{14} \\ |M|_{RR}^2 &= m_1^2 a_1 + m_2^2 a_2 \pm 2m_1 m_2 a_{12} \\ |M|_{RL}^2 &= m_2^2 a_2 + m_3^2 a_3 + m_4^2 a_4 + 2m'_2 m_3 a_{23} \pm 2m'_2 m_4 a_{24} \pm 2m_3 m_4 a_{34} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

² JAUCH, J. M., u. F. ROHRlich: Theory of Photons and Electrons, S. 263. Cambridge Mass.: Addison Wesley 1955.

mit den Abkürzungen

$$\left. \begin{aligned} 2a_{\frac{1}{2}} &= 1 + \cos \vartheta \cos \bar{\vartheta} \mp \sin \vartheta \sin \bar{\vartheta} \cos (\bar{\varphi} + \varphi) \\ 2a_{\frac{3}{4}} &= 1 - \cos \vartheta \cos \bar{\vartheta} \mp \sin \vartheta \sin \bar{\vartheta} \cos (\bar{\varphi} - \varphi + 2\Phi) \\ 2a_{\frac{1}{2} \frac{3}{4}} &= + (\cos \vartheta \pm \cos \bar{\vartheta}), \\ 2a_{\frac{1}{2} \frac{2}{3}} &= \cos \vartheta \sin \bar{\vartheta} \cos (\bar{\varphi} + \Phi) \pm \cos \bar{\vartheta} \sin \vartheta \cos (\varphi - \Phi) \\ 2a_{\frac{2}{3} \frac{4}} &= + \sin \vartheta \cos (\varphi - \Phi) + \sin \bar{\vartheta} \cos (\bar{\varphi} + \Phi). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Die Gln. (1) bis (4) geben den differentiellen *Wirkungsquerschnitt für den allgemeinen Fall der Positron-Elektron-Polarisation*. Wird die Polarisation nur eines Photons gemessen, dann hat man über die beiden Polarisationsrichtungen des anderen zu summieren. Wird die Photon-Polarisation überhaupt nicht gemessen, dann gilt

$$\left. \begin{aligned} d\sigma &= r_0^2 \frac{d\Omega}{2\beta\gamma^4 [1 - \beta^2 \cos^2 \Theta]^2} \{a_1 + \beta^2 (1 + \sin^4 \Theta) \cdot a_2 + \\ &+ \beta^2 \gamma^2 \sin^2 \Theta \cos^2 \Theta \cdot a_3 + \beta^2 \gamma^2 \sin^2 \Theta a_4 + 2\beta^2 \sin^3 \Theta \cos \Theta a_{23}\}. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Der Wirkungsquerschnitt zeigt starke Spinabhängigkeit. Für $\Theta = 0$ verschwindet er aus Drehimpulserhaltungsgründen, wenn die beiden Spins parallel stehen, für antiparallelen Spin dagegen ist er ungleich Null:

$$\frac{d\sigma_{\uparrow\uparrow}}{d\sigma_{\uparrow\downarrow}} \equiv f = \frac{\gamma^2 \beta^2 \sin^2 \Theta (1 + \cos^2 \Theta)}{1 + \beta^2 (1 + \sin^4 \Theta)}.$$

Bei endlichem Winkel wird oberhalb einer bestimmten Energie das Verhältnis f größer eins.

Meist wird bei Experimenten das Elektron im Laborsystem ruhen, daher seien anhangsweise noch die Transformationsformeln für diesen Fall angegeben: (gestrichene Größen im Labor-System)

$$\text{Photon: } \omega', \Theta', \Phi' = \Phi \quad \text{Elektron: } \vec{p}'_- = 0, \quad \varepsilon'_- = m$$

$$\text{Positron: } \vec{p}', \quad \varepsilon', \quad p'^2 = \varepsilon'^2 - m^2, \quad p' \equiv |\vec{p}'|$$

$$\varepsilon' = \frac{2\varepsilon^2 - m^2}{m}, \quad \cos \Theta' = \frac{p + \varepsilon \cos \Theta}{\varepsilon + p \cos \Theta},$$

$$p' = \frac{2\varepsilon}{m} p, \quad \omega' = \frac{\varepsilon}{m} (\varepsilon + p \cos \Theta).$$

Herrn Dr. H.-J. BORCHERS danke ich für Diskussionen und Kontrollrechnungen in Spezialfällen.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Heidelberg
und dem Institut für Theoretische Physik der Universität Hamburg

Der Einfluß der Polarisation auf die Wirkungsquerschnitte für Möller- und Bhabha-Streuung

Von

KLAUS BÖCKMANN, GUSTAV KRAMER und W. R. THEIS

(Eingegangen am 10. Oktober 1957)

Die Polarisation von Elektronen und Positronen kann durch Streuung an ausgerichteten Elektronen bestimmt werden. Dazu ist die Kenntnis des Streuquerschnitts nötig. Dieser war jedoch nur für den Spezialfall paralleler bzw. antiparalleler Orientierung der Spins gegeneinander bekannt^{*,1}, der sich experimentell nicht verwirklichen läßt. Der differentielle Wirkungsquerschnitt für die Streuung longitudinal polarisierter Elektronen und Positronen an ruhenden beliebig polarisierten Elektronen wird explizit angegeben.

Die Ausgangsformeln für die Berechnung der Streuquerschnitte für Elektron-Elektron und Elektron-Positron-Streuung sind in der Literatur bekannt² und sind in niedrigster strahlungstheoretischer Ordnung gewonnen. Im Gegensatz zu den ursprünglichen Rechnungen von MÖLLER³ und BHABHA⁴ wird über die verschiedenen Spinzustände im Anfangszustand nicht summiert. Es wird vielmehr angenommen, daß die ausgerichteten im Laborsystem ruhenden Elektronen den Spinnerwartungswert $\vec{s}/2$ haben und die einfallenden Teilchen longitudinal polarisiert sind mit dem Spinnerwartungswert $\vec{\xi}/2$ in Einfallrichtung^{**}.

\vec{p} sei der Ausgangsimpuls der zu untersuchenden Elektronen bzw. Positronen, \vec{p}' der Impuls der Elektronen nach der Streuung. Die Formeln werden im Laborsystem angegeben, die im Schwerpunktsystem

* In einem Baudruck von C. J. MULLIN und G. W. FORD, der nach Beendigung dieser Rechnungen erschien, wird auch der allgemeinere Fall im Schwerpunktsystem behandelt. Einer der Verfasser (W. T.) dankt den Autoren für eine briefliche Auskunft über zwei Versehen in den betreffenden Formeln (8) und (9) ihres Baudrucks. *Anmerkung bei der Korrektur:* Publiziert in Phys. Rev. **108**, 477 (1957).

** $\hbar = c = 1$ gesetzt.

¹ FRAUENFELDER, H., A. O. HANSON, N. LEVINE, A. ROSSI u. G. DE PASQUALI: Phys. Rev. **107**, 643 (1957). — BINCER, A. M.: Phys. Rev. **107**, 1434 (1957).

² JAUCH, J. M., u. F. ROHRICH: Theory of Photons and Electrons, S. 252—261. Cambridge, Mass.: Addison Wesley 1955.

³ MÖLLER, C.: Ann. d. Phys. **14**, 568 (1932).

⁴ BHABHA, H. J.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **154**, 195 (1935).

geltenden Formeln sind im Anhang beigelegt. Im Laborsystem ist es zweckmäßig, den Streuquerschnitt durch die kinetische Energie q der Elektronen nach der Streuung in Einheiten der Elektronenmasse m auszudrücken, γ sei die Energie der einfallenden Elektronen bzw. Positronen in Einheiten von m . Der differentielle Wirkungsquerschnitt lautet dann, wenn $\vec{p}^2 = p^2 = \gamma^2 - 1$ und $\vec{p}'^2 = p'^2 = (q+1)^2 - 1$ und r_0 der „klassische Elektronenradius“ $e^2/4\pi mc^2$ ist

$$d\sigma = r_0^2 \frac{dq d\varphi}{\gamma^2 - 1} \left\{ A + \xi B \left(\vec{s} \cdot \frac{\vec{p}}{p} \right) + \xi C \frac{p'}{p} \left(\vec{s} \cdot \frac{\vec{p}'}{p'} \right) \right\} \quad (1)$$

oder

$$d\sigma = r_0^2 \frac{dq d\varphi}{\gamma^2 - 1} \left\{ A + s \xi \left(B + \frac{q}{\gamma - 1} C \right) \cos \alpha + \right. \\ \left. + s \xi \frac{[2q(\gamma + 1)(\gamma - 1 - q)]^{\frac{1}{2}}}{\gamma^2 - 1} C \sin \alpha \cos \varphi \right\}. \quad (2)$$

In (2) bezeichnet α den Winkel zwischen \vec{p} und \vec{s} , und φ das Azimut von \vec{p}' , gemessen in der zu \vec{p} senkrechten Ebene. \vec{s} hat das Azimut $\varphi = 0$. s ist der Betrag von \vec{s} .

Die Größen A , B und C hängen nur von γ und q ab und sind für Elektronen und Positronen verschieden. Für Elektron-Elektron-Streuung (Møller-Streuung) gilt:

$$\left. \begin{aligned} A &= \frac{1}{q^2(\gamma - 1 - q)^2} \{ \gamma^2(\gamma - 1)^2 - q(\gamma - 1 - q) \times \\ &\quad \times [2\gamma^2 + 2\gamma - 1 - q(\gamma - 1 - q)] \} \\ B &= \frac{1}{q(\gamma - 1 - q)} (\gamma - 2\gamma^2 + q^2 + 2q) \\ C &= \frac{1}{q(\gamma - 1 - q)} (\gamma + 1)(\gamma - 1 - 2q). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Für Positron-Elektron-Streuung (Bhabha-Streuung) ergibt sich:

$$\left. \begin{aligned} A &= \frac{1}{q^2(\gamma + 1)^2} \{ \gamma^2(\gamma + 1)^2 - q(\gamma + 1 - q) \times \\ &\quad \times (2\gamma^2 + 4\gamma + 1 - \gamma q + q^2 + q) + 2q^2(\gamma + 2) \} \\ B &= \frac{1}{q(\gamma + 1)^2} (\gamma - q)(q^2 + q - 1 - 3\gamma - 2\gamma^2) \\ C &= \frac{1}{q(\gamma + 1)} (\gamma - q)(\gamma - 2q + 1). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Bei der Møller-Streuung verschwindet der dritte Term in (1), wenn die beiden Elektronen nach der Streuung gleiche Energien haben. Dieser Spezialfall lag bei der ersten Anwendung vor¹. Bei der Bhabha-Streuung verschwindet C für $q = \frac{\gamma + 1}{2}$, d.h. nicht für gleiche Energien von Elektron und Positron nach der Streuung. Man bemerkt, daß $0 \leq q \leq \gamma - 1$

ist, so daß C nur für $\gamma > 3$ verschwinden kann. In diesen Fällen ist dann der Streuquerschnitt nur vom Kosinus des Winkels zwischen der Spinrichtung und der Impulsrichtung des einfallenden Teilchens abhängig.

Bei der Positron-Elektron-Streuung wird im allgemeinen auch der Streuquerschnitt für den Fall interessieren, daß das Positron nach der Streuung beobachtet wird. Bezeichnen wir den Impuls des Positrons nach der Streuung mit \vec{p}'' und mit q' die kinetische Energie des Positrons nach der Streuung, so folgt aus (1) für den Streuquerschnitt mit $\vec{p}''^2 = p'''^2 = (q' + 1)^2 - 1$

$$d\sigma = r_0^2 \frac{dq' d\varphi'}{\gamma^2 - 1} \left\{ A + \xi B \left(\vec{s} \frac{\vec{p}}{p} \right) + \xi C \frac{p''}{p} \left(\vec{s} \frac{\vec{p}''}{p''} \right) \right\} \quad (5)$$

oder

$$d\sigma = r_0^2 \frac{dq' d\varphi'}{\gamma^2 - 1} \left\{ A + s\xi \left(B + \frac{q'}{\gamma - 1} C \right) \cos \alpha + s\xi \frac{[2q'(\gamma + 1)(\gamma - 1 - q')]^{\frac{1}{2}}}{\gamma^2 - 1} C \sin \alpha \cos \varphi' \right\} \quad (6)$$

φ' ist das Azimut von \vec{p}'' . Es ist:

$$\left. \begin{aligned} A &= \frac{1}{(\gamma - 1 - q')^2 (\gamma + 1)^2} \{ \gamma^2 (\gamma + 1)^2 - (\gamma - 1 - q') (q' + 2) \times \\ &\quad \times (2\gamma^2 + 4\gamma + 1 - \gamma q' + q' + q'^2) + 2(\gamma - 1 - q')^2 (\gamma + 2) \} \\ B &= \frac{1}{(\gamma - 1 - q') (\gamma + 1)^2} (q' + 1) (q'^2 + 3q' + 2 - 2\gamma - 2\gamma^2) \\ C &= \frac{1}{(\gamma - 1 - q') (\gamma + 1)} (q' + 1) (\gamma - 2q' - 3). \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Aus Gl. (7) entnimmt man, daß C in diesem Fall für $q' = \frac{\gamma - 3}{2}$ verschwindet. In den folgenden beiden Spezialfällen hängt der Wirkungsquerschnitt gleichfalls nur vom Kosinus des Winkels zwischen \vec{s} und der Impulsrichtung des einfallenden Teilchens ab:

1. \vec{s} steht senkrecht auf dem Impuls eines auslaufenden Teilchens; dann fällt der letzte Summand in (1) bzw. (5) fort.

2. Die Vektorkomponente von \vec{s} senkrecht zum Strahl, d.h. senkrecht zu \vec{p} , steht ihrerseits senkrecht auf der Streuebene; dann wird das Azimut $\varphi = \pi/2$, und der letzte Summand in (2) bzw. (6) verschwindet.

Anhang

Die Formeln für $d\sigma$ im Schwerpunktsystem lauten:

$$d\sigma = r_0^2 \frac{d\Omega}{4\gamma^2(\gamma^2 - 1)^2} \left\{ A + \xi B \left(\vec{s} \frac{\vec{p}}{p} \right) + \xi C \left(\vec{s} \frac{\vec{p}'}{p'} \right) \right\}.$$

Dabei ist γ die Energie der Teilchen in Einheiten von m , \vec{p} ist der Impuls der longitudinal polarisierten Teilchen vor der Streuung, \vec{p}' ihr Impuls nach der

Streuung. Es ist $\vec{p}^2 = p^2 = \vec{p}'^2$ und $\beta^2 = \frac{\gamma^2 - 1}{\gamma^2}$. Mit Θ bezeichnen wir den Ablenkwinkel $[(\vec{p} \vec{p}') = p^2 \cos \Theta]$. \vec{s} und ξ beschreiben die Spins im Laborsystem [wie in (1)], alle anderen Größen beziehen sich aufs Schwerpunktsystem.

Die Größen A , B und C hängen nur von Θ und γ ab, und zwar gilt für Elektron-Elektron-Streuung (Møller-Streuung):

$$\begin{aligned} A &= \frac{4(2\gamma^2 - 1)^2}{\sin^4 \Theta} - \frac{8\gamma^4 - 4\gamma^2 - 1}{\sin^2 \Theta} + (\gamma^2 - 1)^2 \\ B &= \frac{2\gamma(\gamma^2 - 1) - (2\gamma^2 - 1)(4\gamma^2 - 3)}{\sin^2 \Theta} + (\gamma^2 - 1)(\gamma - 1)^2 \\ C &= -\frac{2\gamma(\gamma^2 - 1)}{\sin^2 \Theta} \cos \Theta \end{aligned}$$

für Positron-Elektron-Streuung (Bhabha-Streuung)

$$\begin{aligned} 4A &= \frac{1}{(1 - \cos \Theta)^2} \{9\gamma^4 - 14\gamma^2 + 9 - 2\beta^2 + 2\beta^2(3\gamma^2 + 4) \cos \Theta + \\ &\quad + \beta^4(6\gamma^4 + 6\gamma^2 + 1) \cos^2 \Theta + 2\gamma^2 \beta^6 \cos^3 \Theta + \gamma^4 \beta^8 \cos^4 \Theta\} \\ 4B &= \frac{1}{1 - \cos \Theta} \beta^2 \{\gamma^2(-7\gamma^2 + 3) + (-7\gamma^4 + 9\gamma^2 + 2\gamma - 4) \cos \Theta - \\ &\quad - \beta^2(\gamma - 1)^2(\gamma^2 + 1) \cos^2 \Theta - \beta^4 \gamma^2(\gamma - 1)^2 \cos^3 \Theta\} \\ 4C &= \frac{1}{1 - \cos \Theta} 2\gamma^3 \beta^2 \{-1 + \beta^2 - \beta^2(2 - \beta^2) \cos \Theta - \beta^4 \cos^2 \Theta\}. \end{aligned}$$

Anmerkung bei der Korrektur: Polarisierungseffekte bei der Streuung von Elektronen und Positronen an Elektronen werden auch behandelt von A. A. KRESNIN und L. N. ROSENTHAL [J. exper. Theoret. Phys. USSR. **32**, 353 (1957)].

Aus dem Institut für Experimentalphysik der Universität Kiel

Messung der Absorptionsoszillatorenstärke der Magnesium-Interkombinationslinie bei 4571 Å

Von
G. BOLDT

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. September 1957)

Bei der Messung der Oszillatorenstärken von Metall-Resonanzlinien in Absorption liegt die Hauptschwierigkeit in der Bestimmung der Teilchendichte N . Wie die Erfahrung gezeigt hat, ist die Teilchendichte, die sich bei einer bestimmten Temperatur T schließlich einstellt, keineswegs immer durch die Teilchendichtegleichung des betreffenden Metalles gegeben, so daß die Berechnung der Oszillatorenstärke f aus dem experimentell gewonnenen Produkt Nf unter Anwendung der Teilchendichtegleichung zu einem falschen Ergebnis führen kann.

Um diese Unsicherheit auszuschließen, ist ein Verfahren entwickelt worden, das mit drei oder mehr als drei gemessenen (Nf, T) -Wertepaaren arbeitet und zum richtigen Ergebnis führt.

Die Anwendung dieses Verfahrens auf die Magnesium-Interkombinationslinie $3^1S_0 - 3^3P_1$ bei 4571 Å liefert die Absorptionsoszillatorenstärke $f = 5,0 \cdot 10^{-6} \pm 20\%$.

Methode

Wird ein Gas, dessen Absorptionskoeffizient bei der Wellenlänge λ durch k_λ bezeichnet sei, von Licht der Intensität I_λ durchstrahlt, dann ist die Änderung der Lichtenergie längs des Weges dx im Wellenlängenbereich von λ bis $\lambda + d\lambda$ pro Raumwinkel-, Flächen- und Zeiteinheit

$$dI_\lambda d\lambda = -I_\lambda k_\lambda d\lambda dx.$$

Hieraus folgt durch Integration nach λ und nach x unter der Voraussetzung, daß das Gas längs des ganzen Absorptionsweges l homogen, k_λ also von x unabhängig ist,

$$\int \ln \frac{I_\lambda(0)}{I_\lambda(l)} d\lambda = l \int k_\lambda d\lambda.$$

Wird die Integration nach λ über eine ganze Absorptionslinie erstreckt, dann ist

$$\int k_\lambda d\lambda = \frac{\pi e^2}{mc^2} \lambda^2 N f$$

worin e, m, c die bekannten Naturkonstanten, λ die mittlere Wellenlänge der betreffenden Spektrallinie, N die Teilchendichte der absorbierenden

Atome und f die „Absorptionsoszillatorenstärke“ der Spektrallinie bedeuten. Es gilt dann

$$\int \ln \frac{I_{\lambda}(0)}{I_{\lambda}(l)} d\lambda = \frac{\pi e^2}{mc^2} \lambda^2 N f l.$$

Die Absorptionsoszillatorenstärke kann also aus den experimentell ermittelten Werten des Integrales und der Teilchendichte der absorbierenden Atome erhalten werden.

Während der Wert des Integrals ohne wesentliche Schwierigkeiten hinreichend genau zu erhalten ist, ist die Bestimmung der Teilchendichte, wie die Erfahrung gezeigt hat, nicht problemlos. Bestimmen wir

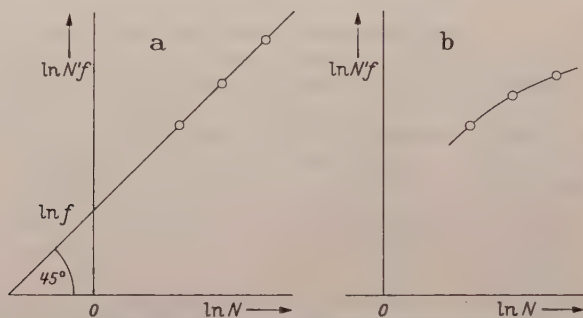


Fig. 1 a u. b. Darstellung der spektroskopisch ermittelten Produkte $N'f$ gegen die aus der Temperatur nach der Dampfdruckgleichung ermittelten Teilchendichten in logarithmischen Koordinaten

nämlich die Teilchendichte aus der Gastemperatur unter Anwendung der Dampfdruckgleichung, dann ist es durchaus möglich, daß wir aus Messungen bei verschiedenen Temperaturen für die Oszillatorenstärke Ergebnisse erhalten, die weit mehr voneinander abweichen, als es Fehlerabschätzungen zufolge zulässig ist. Das bedeutet aber, daß dann bei höchstens einer Temperatur die Teilchendichte den Wert gehabt hat, der sich aus der Dampfdruckgleichung ergibt.

In einem solchen Falle muß zunächst untersucht werden, ob die Teilchendichte zur Zeit des Experimentes bereits den zu der betreffenden Temperatur gehörenden stationären Zustand erreicht hatte. Dies kann einfach dadurch geschehen, daß untersucht wird, ob die einzelnen Aufnahmeserien, die zu bestimmten Temperaturen gehören und sich über jeweils mehrere Stunden erstrecken, in sich einen Gang haben.

Stellt es sich heraus, daß bei jeder Temperatur ein stationärer Zustand geherrscht hat, so daß die Abweichungen von der Dampfdruckgleichung nicht durch eine zu kurze Vorheizzeit erklärt werden können, also auch nicht durch längeres Vorheizen beseitigt werden können, dann muß nach einem Verfahren gesucht werden, welches aus den vorhandenen Meßwerten das richtige Ergebnis für f liefert.

Hierzu machen wir die folgende Überlegung, bei der wir die aus der Dampfdruckgleichung berechnete Teilchendichte mit N , die aus spektroskopischen Messungen erhaltene mit N' bezeichnen wollen:

Wird ein Metaldampf langsam abgekühlt, dann sollte die aus der Dampfdruckgleichung berechnete Teilchendichte N stets proportional dem aus spektroskopischen Messungen erhaltenen Produkt $N'f$ sein, d.h. wenn in einem Diagramm $\ln N'f$ und $\ln N$ gegeneinander aufgetragen werden, dann müßte sich eine Gerade der Steigung 1 ergeben, die die $\ln N'f$ -Achse im Punkte $\ln f$ schneidet (Fig. 1a).

Abweichungen der Teilchendichte N' von der berechneten Dichte N äußern sich nun so, daß in dem genannten Diagramm die Wertepaare $(\ln N'f, \ln N)$ keine Gerade liefern, sondern eine Kurve (Fig. 1b).

In dem Bereich der Kurve, in dem deren Steigung gleich 1 ist, gilt

$$\frac{d(\ln N)}{dT} = \frac{d(\ln N'f)}{dT} = \frac{d(\ln N')}{dT}.$$

Wir machen nun die Annahme, daß in diesem Bereich nicht nur die Ableitungen von $\ln N$ und $\ln N'$ nach der Temperatur T , sondern auch die Funktionen $\ln N(T)$ und $\ln N'(T)$ selbst einander gleich sind.

Zur Bestimmung der Absorptionsoszillatorenstärke müssen wir also nur durch die Meßpunkte im $(\ln N'f, \ln N)$ -Diagramm eine glatte Kurve zeichnen und an diese Kurve die Tangente der Steigung 1 legen. Diese Tangente schneidet dann die $\ln N'f$ -Achse im Punkte $\ln f$ (Fig. 2).

Um hierbei eine möglichst große Objektivität zu erreichen, wird es zweckmäßig sein, diese Aufgabe nicht zeichnerisch, sondern rechnerisch zu erledigen.

Wir werden also die interpolierende Kurve durch

$$\ln N'f = \sum_{n=0}^{z-1} a_n (\ln N)^n$$

beschreiben, wobei z die Anzahl der zur Verfügung stehenden Wertepaare $(\ln N'f, \ln N)$ ist. Die Koeffizienten a_n sind aus den vorhandenen Wertepaaren zu bestimmen. Es folgt

$$\frac{d(\ln N'f)}{d(\ln N)} = \sum_{n=0}^{z-1} n a_n (\ln N)^{n-1}$$

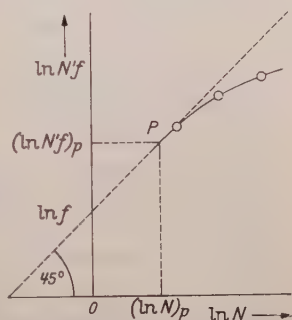


Fig. 2. Graphische Darstellung zur Ermittlung der Oszillatorenstärke f aus den gemessenen Wertepaaren $N'f; T$

Der Abszissenwert $(\ln N)_p$, bei dem der Anstieg der Kurve $d(\ln N'f)/d(\ln N) = 1$ ist, ergibt sich als Lösung der Gleichung

$$1 = \sum_{n=0}^{z-1} n a_n (\ln N)_p^{n-1}$$

wobei nur diejenige Lösung $(\ln N)_p$ physikalisch sinnvoll ist, die in dem von den Meßwerten überdeckten Bereich oder nahe dabei liegt, weil die für $\ln N'f$ angesetzte Funktion nur hier gilt.

Nach unserer Annahme ist $(\ln N')_p = (\ln N)_p$, so daß

$$(\ln N'f)_p = (\ln N')_p + (\ln f) = (\ln N)_p + (\ln f)$$

und schließlich

$$\ln f = (\ln N'f)_p - (\ln N)_p = \sum_{n=0}^{z-1} a_n (\ln N)_p^n - (\ln N)_p.$$

Fehlerabschätzung. Das Verfahren ist, wie bereits angedeutet, nur dann sinnvoll anwendbar, wenn der Punkt P , in welchem der Anstieg $d(\ln N'f)/d(\ln N) = 1$ ist, in dem von den Meßwerten überdeckten Bereich oder nahe dabei liegt. Ob das der Fall ist, kann schon aus den vorliegenden $(\ln N'f, \ln N)$ -Wertepaaren ersehen werden.

In dem genannten Bereich ist es aber praktisch belanglos, welche Funktion zur Interpolation verwendet wird, da alle Funktionen hier nahezu denselben Verlauf haben. Der spezielle Ansatz der interpolierenden Funktion hat also nur eine unwesentliche Unsicherheit des Ergebnisses zur Folge, die gegenüber den in den Meßwerten liegenden Unsicherheiten zu vernachlässigen ist.

Die durch die Ungenauigkeit der Meßwerte verursachte relative Unsicherheit des f -Wertes ergibt sich zu

$$\frac{df}{f} \approx \frac{d(N'f)_m}{(N'f)_m} + \frac{dN_m}{N_m},$$

wobei der Index m den P am nächsten liegenden Meßpunkt kennzeichnet, d.h. der relative Fehler des Ergebnisses ist im wesentlichen durch die Summe der relativen Fehler eines der $(N'f, N)$ -Wertepaare gegeben.

Experimenteller Teil

Die Apparatur. Der Magnesiumdampf wird in einem Absorptionsrohr des Innendurchmessers 6 cm und der Länge 50 cm erzeugt. Dieses Rohr ist aus dem hitze- und zunderbeständigen Stahl THERMAX 10A angefertigt.

Um das Eindringen von Luft in das Absorptionsgefäß während des viele Stunden dauernden Versuches zu verhindern, wird während des Versuches in dem Gefäß ein Argon-Gasdruck von etwas mehr als einer

Atmosphäre aufrechterhalten. Die Regulierung des Füllgasdruckes erfolgt über ein von außen zu bedienendes Ventil, das durch Aufpressen einer Stahlschneide auf gestampftes MgO -Pulver geschlossen wird (Fig. 3). Im Gegensatz zu reinen Stahlventilen, die bereits bei Temperaturen von etwa 500°C verkleben, arbeitet dieses Ventil bei Temperaturen bis 1100°C einwandfrei.

Als Material für die Fenster des Absorptionsrohres ist Quarzglas wegen seiner Unbeständigkeit gegenüber Magnesiumdampf nicht geeignet. Auf Grund einer Arbeit von JOHN STRONG und R.T. BRICE¹

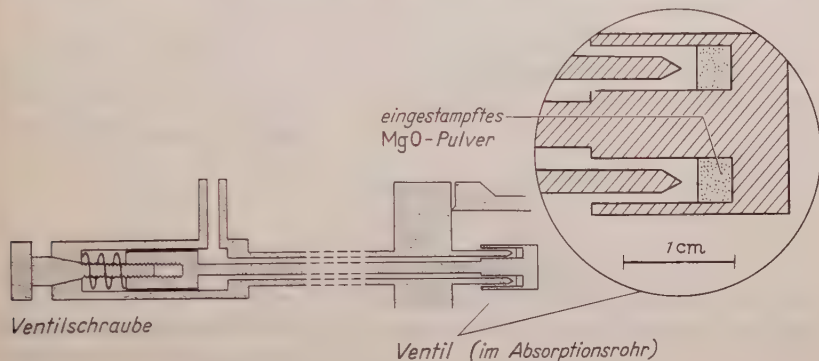


Fig. 3. Ventil für das Absorptionsrohr

über die Eigenschaften des Periklas (Beta-Magnesiumoxyd-Kristall), in welcher unter anderem die Beständigkeit dieses Kristalles gegenüber Calciumdampf bei Temperaturen bis 810°C nachgewiesen wird, wird das Verhalten von Periklas gegenüber Magnesiumdampf untersucht. Es zeigt sich, daß Periklas bei Temperaturen bis 800°C auch von Magnesiumdampf nicht angegriffen wird. Bei höheren Temperaturen erfolgt allerdings eine merkliche Diffusion des Magnesiums in den Kristall hinein, die bei 1000 bis 1100°C nach einigen Stunden eine starke Schwärzung des Kristalles zur Folge hat.

Die von STRONG und BRICE gemachte Angabe über die Lichtdurchlässigkeit des Periklas, wonach bis 2200 \AA herab keine wesentliche Absorption stattfindet, kann für die uns zur Verfügung stehenden Periklas-Kristalle nicht bestätigt werden: Messungen an einem 5 mm dicken Periklas-Fenster ergeben bereits für Wellenlängen unterhalb von 3000 \AA praktisch keine Durchlässigkeit mehr (Fig. 4).

Da jedoch die zu untersuchende Magnesium-Interkombinationslinie $3^1\text{S}_0 - 3^3\text{P}_1$ bei $\lambda = 4571 \text{ \AA}$ liegt und für diese Untersuchung Temperaturen von mehr als 800°C nicht erforderlich sind, kann Periklas als Fenstermaterial verwendet werden.

¹ JOHN STRONG u. R.T. BRICE: J. Opt. Soc. Amer. **25**, 207 (1935).

Das Problem, die Periklas-Fenster vakuumdicht in metallische Fassungen einzufügen, die dann ihrerseits ohne Schwierigkeiten vakuumdicht in die Endflächen des Absorptionsrohres eingeschraubt werden können, wird in der Weise gelöst, daß das Periklas-Fenster mit einem durchbohrten Bolzen auf eine sehr scharfe, in die Stahlfassung eingedrehte Schneide gedrückt wird (Fig. 5). Die „Leckzahl“ dieser Fensterfassung wird bei Temperaturen bis 1100°C zu

$$L = 3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$$

gemessen, wobei die „Leckzahl“ L durch die Gleichung

$$\frac{dp}{dt} = L \frac{\Delta p}{V}$$

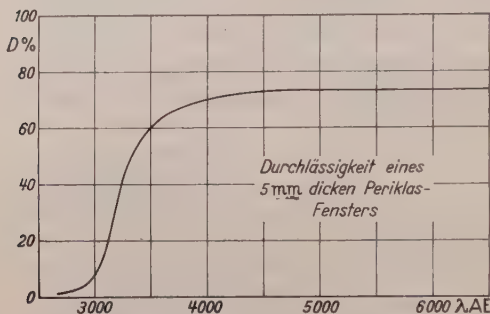


Fig. 4. Durchlässigkeit eines 5 mm dicken Periklas-Fensters

definiert ist, in der V das Volumen des mit einem Leck versehenen Gefäßes, Δp die Druckdifferenz zwischen den Gasen innerhalb und außerhalb des Gefäßes und dp/dt die durch das Leck verursachte zeitliche Änderung des Druckes im Gefäß ist.

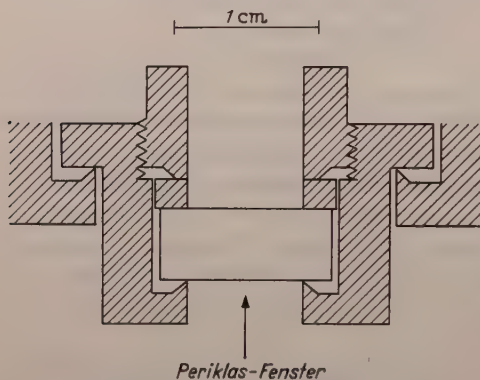


Fig. 5. Fassung der Periklas-Fenster

Zur Aufheizung des Absorptionsrohres dient ein elektrischer Ofen, dessen Heizelement aus zwei hintereinandergesetzten Spiralen vom Typ „Kanthal REH 10–60“ besteht und dessen Heizvolumen bei einem Durchmesser von 10 cm eine Länge von 90 cm hat. Die verhältnismäßig hohe Wärmekapazität der

Wärmeisolierung verursacht zwar eine lange Aufheizzeit, garantiert aber andererseits nach Einregelung auf eine bestimmte Temperatur ohne weitere Regeleinrichtung Temperaturkonstanz bis auf $\pm 0,5^{\circ}$ über mehrere Stunden. Die Stromversorgung erfolgt über einen Regeltransformator.

Zur Temperaturmessung findet ein in den Heizraum eingeführtes NiCr–Ni-Thermoelement ($0,04 \text{ mV}/^{\circ}\text{C}$) Verwendung, das einerseits an ein mV-Meter angeschlossen, andererseits in eine Kompensationsschaltung eingebaut ist, so daß gleichzeitig die Temperatur selbst gemessen

und die Abweichung der Temperatur von einem festen Wert (Empfindlichkeit des Spiegelgalvanometers in der Kompensationsschaltung: 10 cm/°C), also die zeitliche Temperaturkonstanz, kontrolliert werden kann.

Als Lichtquelle dient eine Xenon-Hochdrucklampe vom Typ XBO 1029, die wegen ihres kontinuierlichen Spektrums und wegen ihrer großen Leuchtdichte für diesen Zweck besonders geeignet ist.

Aufnahmetechnik. Die Xenon-Hochdrucklampe wird durch eine Linse in das Innere des Absorptionsrohres, von dort durch eine weitere Linse auf einen kleinen Planspiegel und schließlich durch einen Hohlspiegel auf den Spalt eines Rowland-Spektrographen abgebildet. Beobachtet wird in der 2. Ordnung. Die Dispersion beträgt dort 1,29 Å/mm.

Bei den Temperaturen

$$t_1 = 614^\circ \text{C} \text{ bzw. } T_1 = 887^\circ \text{K}$$

$$t_2 = 551^\circ \text{C} \text{ bzw. } T_2 = 824^\circ \text{K}$$

$$t_3 = 506^\circ \text{C} \text{ bzw. } T_3 = 779^\circ \text{K}$$

werden Aufnahmeserien von jeweils 14 Aufnahmen gemacht. Hierbei finden Perutz-Spektral-450-Platten Verwendung.

Auswertung und Ergebnis

Wie die Photometrierung der drei Aufnahmeserien zeigt, haben die einzelnen Serien keinen Gang in sich, d.h. zur Zeit der Aufnahmen hat stets der bei den gegebenen Verhältnissen zu der jeweils vorhandenen Temperatur gehörende stationäre Zustand des Magnesiumdampfes geherrscht.

Die gemessenen Linienprofile, die infolge ihrer mit der Halbwertsbreite des Apparateprofiles vergleichbaren Halbwertsbreite merklich verzerrt sind, werden unter Anwendung von Voigt-Funktionen entzerrt (Fig. 6). Die Auswertung der entzerrten Linienprofile ergibt die folgenden $\ln N'f$ -Werte:

$$(\ln N'f)_1 = 23,978$$

$$(\ln N'f)_2 = 23,200$$

$$(\ln N'f)_3 = 22,322.$$

Die zu den $\ln N'f$ -Werten gehörenden $\ln N$ -Werte liefert vermöge der Beziehung $p = N k T$ die von A. EUCKEN² angegebene Dampfdruck-

² EUCKEN, A.: Metallwirtschaft 15, 64, 65 (1936) bzw. Gmelins Handbuch, Bd. 27, Teil A.

gleichung

$$\log p \text{ (mm Hg)} = -\frac{7636,0}{T} + 2,500 \log T + 3,268 - \\ - 2,949 \cdot 10^{-3} T + 0,874 \cdot 10^{-6} T^2$$

$$(\ln N)_1 = 37,156$$

$$(\ln N)_2 = 35,741$$

$$(\ln N)_3 = 34,585.$$

Die durch die $(\ln N'f, \ln N)$ -Wertepaare gegebenen Punkte im $(\ln N'f, \ln N)$ -Diagramm liegen nicht auf einer Geraden. Infolgedessen wird die weitere Auswertung nach der eingangs geschilderten Methode durchgeführt. Dabei ergeben sich aus den Meßwertepaaren die Koeffizienten a_n der interpolierenden Funktion zu

$$a_0 = -104,749$$

$$a_1 = +6,49466$$

$$a_2 = -0,081553$$

der Abszissenwert, bei welchem der Anstieg

$$d(\ln N'f)/d(\ln N)$$

gleich 1 ist, zu

$$(\ln N)_p = 33,688.$$

Hieraus folgt schließlich für die Absorptionssoszillatorenstärke

$$f = 5,0 \cdot 10^{-6}.$$

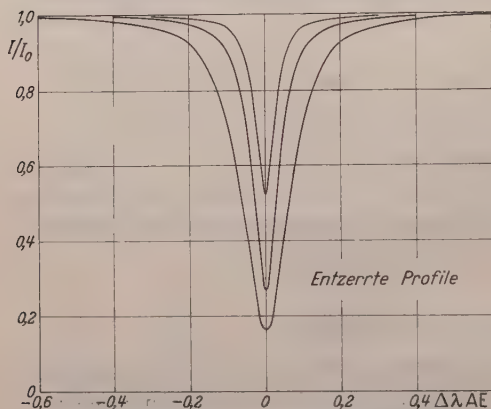


Fig. 6. Profile der entzernten Absorptionslinie $\lambda = 4571 \text{ \AA}$ bei verschiedenen Temperaturen

Fehlerabschätzung. Der relative Fehler des Ergebnisses ist im wesentlichen durch die Summe der relativen Fehler von $N'f$ und N des Meßpunktes (m) bei 779° K gegeben:

Der Fehler $d(N'f)_m/(N'f)_m$ setzt sich zusammen aus dem Fehler, der sich aus den (statistischen) Abweichungen der 14 Aufnahmen der Serie von ihrem Mittelwert zu 2% errechnet und der mit 2% abzuschätzenden Unsicherheit, die im Ansatz der Voigt-Funktionen liegt, beträgt also 4%.

Der Fehler dN_m/N_m wird durch die in der Temperaturmessung liegende Unsicherheit verursacht und ergibt sich aus der Dampfdruckgleichung zu :

$$\frac{dN_m}{N_m} = 0,027 dT.$$

Die Unsicherheit bei der Temperaturmessung wird mit $dT = \pm 5^\circ \text{ K}$ abgeschätzt, so daß für N_m ein Fehler von 14% erhalten wird.

Der relative Fehler des Ergebnisses kann daher mit 20% abgeschätzt werden.

Die Absorptionssoszillatorenstärke der Magnesium-Interkombinationslinie $3^1S_0 - 3^1P_1$ bei 4571 Å ist also

$$f = 5,0 \cdot 10^{-6} \pm 20\% .$$

Abschließend sei der gemessene f -Wert mit den f -Werten verglichen, die aus der von E. TREFFTZ³ wellenmechanisch berechneten Absorptionssoszillatorenstärke der Resonanzlinie $3^1S_0 - 3^1P_1$ (2852 Å) bei Anwendung der Pauli-Houston-Formel bzw. einer von W. PROKOFJEW empirisch erhaltenen Formel für das Verhältnis der f -Werte von Resonanz- und Interkombinationslinie eines Zweielektronen-Atoms folgen:

Die aus wellenmechanischen Überlegungen erhaltene Pauli-Houston-Formel⁴ liefert für ein Zweielektronensystem das Verhältnis der Absorptionssoszillatorenstärken von Resonanz- und Interkombinationslinie:

- Bedeutet f_1 die Absorptionssoszillatorenstärke der Resonanzlinie,
- f_3 die der Interkombinationslinie,
- λ_1 die Wellenlänge der Resonanzlinie,
- λ_3 die der Interkombinationslinie,
- dE die Energiedifferenz zwischen den Zuständen $3P_2$ und $3P_0$ des ersten Termes im Tripletsystems,
- ΔE die Energiedifferenz zwischen dem ersten Zustand $1P_1$ und dem Mittelwert des ersten Termes $3P_{2,1,0}$,

dann ist

$$\frac{f_3}{f_1} = \frac{2}{9} \left(\frac{dE}{\Delta E} \right)^2 \frac{\lambda_1}{\lambda_3} .$$

Die Anwendung dieser Formel auf Magnesium liefert mit

$$dE/\Delta E = 60,8/13160,2 = 4,62 \cdot 10^{-3}$$

und

$$\lambda_1/\lambda_3 = 2852/4571 = 0,624$$

$$\frac{f_3}{f_1} = 2,96 \cdot 10^{-6}$$

so daß, wenn für f_1 der von E. TREFFTZ berechnete Wert

$$f_1 = 1,674$$

gesetzt wird,

$$f_3 = 4,95 \cdot 10^{-6}$$

in Übereinstimmung mit dem Meßergebnis erhalten wird.

³ TREFFTZ, E.: Z. Astrophys. **28**, 67 (1950).
⁴ MITCHEL, A. C. G., u. M. W. ZEMANSKY: Resonance Radiation **1934**, 151.

Ausgehend von den Ergebnissen seiner Relativmessungen (anomale Dispersion) an Ca, Sr, Ba hat W. PROKOFJEW⁵ eine empirische Formel angegeben, die das Verhältnis der Absorptionsoszillatorenstärken von Resonanz- und Interkombinationslinie der untersuchten Elemente einigermaßen gut wiedergibt:

Bedeutet DE die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand 1S_0 und dem Mittelwert des ersten Termes $^3P_{2,1,0}$, während sonst dieselbe Symbolik wie bei der Pauli-Houston-Formel gilt, dann ist

$$\frac{f_3}{f_1} = \left(\frac{dE}{DE} \right)^{2,44} \left(\frac{\lambda_3}{\lambda_1} \right)^2.$$

Die Anwendung dieser Formel auf Magnesium liefert mit

$$dE/DE = 60,8/21891,2 = 2,78 \cdot 10^{-3}$$

$$\frac{f_3}{f_1} = 1,50 \cdot 10^{-6}$$

so daß mit

$$f_1 = 1,674$$

$$f_3 = 2,50 \cdot 10^{-6}$$

folgt.

Herrn Professor Dr. W. LOCHTE-HOLTGREVEN danke ich für stets förderndes Interesse, ebenso der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Überlassung des Photometers und der Osram-Studiengesellschaft für die Stiftung einer Xenon-Lampe.

⁵ PROKOFJEW, W.: Z. Physik **50**, 701 (1928).

Aus dem Laboratorium der Leybold-Hochvakuum-Anlagen G.m.b.H.
Köln-Bayenthal

Zur Theorie der röntgenographischen Verteilungskurven von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen

Von

G. VOIGTLÄENDER-TETZNER

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 15. Oktober 1957)

Man erhält experimentell die statistische Häufigkeitsverteilung von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen, indem man ihre Röntgenstreuintensität Fourier-transformiert. Dabei ist ein Abbrucheffect nicht zu vermeiden, der die so erhaltene „röntgenographische Verteilungskurve“ in charakteristischer Weise verzerrt. Der Grad der Verzerrung ist von der Größe der statistischen Schwankungen der Atomlagen im durchstrahlten Volumen und von der Meßgrenze der Streuintensität abhängig.

Um diese Einflüsse zu untersuchen, wird zunächst die Gleichung der Streuintensität für Flüssigkeiten und amorphe Stoffe abgeleitet. Sie wird bei Berücksichtigung des Abbrucheffectes Fourier-transformiert, und die erhaltene röntgenographische Verteilungskurve wird dann für verschiedene Werte der Schwankungen und der Meßgrenze diskutiert. Ganz im Gegensatz zur bisherigen Theorie ergibt es sich, daß je nach Größe dieser Werte drei verschiedene Typen von Abstandsbeiträgen in der Verteilungskurve auftreten. Der Einfluß des Mittelungsfehlers bei mehratomigen Substanzen und des experimentellen Meßfehlers werden untersucht.

Die Grundlagen zur Bestimmung der Struktur von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen sind uns seit langem bekannt [DEBYE (1915)], DEBYE und MENCKE (1931), ZERNICKE und PRINS (1927)]. Experimentell erhält man durch Fourier-Analyse der korrigierten Röntgen-Streuintensität die sog. röntgenographische Verteilungskurve, die die mittlere Verteilung der Atome um jedes Atom des Stoffes herum angibt. WARREN und GINGRICH (1934) haben diesen Vorgang zu einer handlichen Methode ausgebaut, die dann auch auf eine große Anzahl von Substanzen angewendet wurde*.

In jüngerer Zeit haben JAGODZINSKI (1947) und RICHTER und BREITLING (1951) auswertetechnische und experimentelle Verbesserungen

* Den umgekehrten Weg haben FOURNET und GUINIER (1949) eingeschlagen, indem sie versuchen, nach der statistischen Theorie Flüssigkeitsdiagramme zu berechnen. Hierbei sind jedoch einige zum Teil schwerwiegende Vereinfachungen nötig [vgl. GREEN 1952)], so daß die richtige Wiedergabe der Intensität über das erste große Maximum der Intensitätskurve nicht hinausgeht. Das bedeutet aber, wie wir später sehen werden, daß sich nur der kürzeste mittlere Abstand der ersten Koordination in der Flüssigkeit mit dieser Methode erfassen läßt.

eingeführt. Schließlich gelang es HOSEMAN (1949, 1950), eine exakte Analyse der Grundlagen der Röntgenstrukturforschung zu schaffen, die auch für die hier betrachteten Stoffe gültig ist. Trotzdem wurde im allgemeinen bei den praktischen Auswertungen übersehen, daß die Verteilungskurve das Quadrat, genauer das Faltungsquadrat (HOSEMAN) der Atomdichte wiedergibt und nicht die Atomdichte selbst. Ganz gegen das statistische Wesen dieser Strukturen versucht man, aus den experimentellen Verteilungskurven Strukturmodelle mit präzis definierten Atomlagen abzuleiten, ohne Rücksicht auf die vorhandenen Lage-schwankungen. Entsprechend findet man in amorphen Substanzen ausgeprägte Nahordnungsbereiche, Schichtenpakete usw., die allen statistischen Theorien [etwa KIRKWOOD, LEWINSON und ALDER (1952)] widersprechen.

Ebenso wird nicht genug berücksichtigt, daß der Meßfehler allein schon die Extrema in der Verteilungskurve verbreitern muß, und Atomlagen nur innerhalb ihrer Fehlerbreiten sich angeben lassen. Berücksichtigt man weiter, daß durch den Abbrucheffect der Fourier-Transformation [HOSEMAN und BAGCHI (1953)] die Verteilungskurve in ganz charakteristischer Weise verändert wird [VOIGTLAENDER-TETZNER (1955)], so sind alle Gründe genannt, warum es nötig ist, die Theorie der röntgenographischen Verteilungskurve noch einmal zu untersuchen.

Dazu ist es zunächst erforderlich, eine Gleichung für die Streuintensität abzuleiten, die alle gesuchten statistischen Parameter enthält. Diese transformiert man unter Berücksichtigung des Abbrucheffectes der Fourier-Transformation in den physikalischen Raum. Die dort entstehende Funktion besitzt dann ebenfalls alle statistischen Parameter. Sie ist in charakteristischer Weise durch den Abbrucheffect verzerrt und entspricht ganz den experimentell gefundenen Kurven.

1. Die Röntgen-Streuintensität

Gesucht ist die Streuintensität einer Atomanordnung mit flüssigkeitsstatistischer Häufigkeitsverteilung. Die Intensität einer beliebigen Anordnung von Atomen hat bereits DEBYE (1915) angegeben. Diese Debyesche Gleichung muß als Spezialfall in unserer Rechnung enthalten sein. Ebenso müssen die Grenzfälle des Einkristalls einerseits und des Gases andererseits aus dem Ausdruck für die Intensität hervorgehen.

In einer Flüssigkeit oder einem festen amorphen Stoff erwarten wir a priori kein Gitter, auch nicht in kleinsten Bereichen. Deshalb betrachten wir nicht Gitterzellen, für die man den Strukturfaktor zu berechnen hat [v. LAUE (1948)], sondern die Atome und ihre Lagen allein. Die Atome können dabei verschiedene Elektronendichten besitzen, z.B. die O-, C- und H-Atome im flüssigen Äthylalkohol.

Ist x der Vektor im physikalischen Raume, so liegt ganz allgemein an der Stelle x_i das Atom i mit der Elektronendichteverteilung

$$\varrho_i(x - x_i) = \widehat{\varrho_i(x)} P(x - x_i). \quad (1)$$

Dabei ist $\varrho_i(x)$ die Elektronendichte des Atoms i , wenn es am Nullpunkt läge, $P(x - x_i)$ die Punktfunktion nach EWALD (1940) und der Bogen das Zeichen für die Faltung [HOSEMAN (1950)].

Eine momentane Atomverteilung im durchstrahlten Volumen ist dann bei N -Atomen in der Substanz

$$\varrho_\infty(x) = \sum_{i=1}^N \widehat{\varrho_i(x)} P(x - x_i). \quad (2)$$

Bilden wir nach HOSEMAN (1950) das Faltungsquadrat, so finden wir:

$$\begin{aligned} \varrho_\infty^2 &= \left\{ \sum_i^N \sum_k^N \widehat{\varrho_i(x)} \widehat{\varrho_k(-x)} \widehat{P(x - x_i)} \widehat{P(x - x_k)} \right\} \\ &= \left\{ \sum_i^N \sum_k^N \widehat{\varrho_i(x)} \widehat{\varrho_k(-x)} \widehat{P[x - (x_i - x_k)]} \right\}. \end{aligned} \quad (3)$$

Dies ist die Abstandsstatistik für jedes Atom. Sie gibt uns die Häufigkeit an, mit der andere Atome k in der Umgebung eines beliebig herausgegriffenen Atoms i im Abstände $x_i - x_k$ anzutreffen sind. Über die Form der Statistiken in der Natur können wir zunächst nichts aussagen; Modelle haben HOSEMAN und SCHOKNECHT (1956) untersucht und ihre Verteilungskurve bestimmt. In Fig. 1 sind ein solches Modell und seine Statistik dargestellt. Wir haben danach auf jeden Fall zu erwarten, daß die Statistiken gewisse Häufungen mit Maximis besitzen, während diskrete Abstände im einzelnen nicht festzustellen sind.

Es ist daher vernünftig, die Abstandsstatistik Gl. (3) durch eine Summe Gaußscher Verteilungskurven

$$\frac{1}{(\alpha\beta\gamma)_{ijk} \pi^{\frac{3}{2}}} e^{-x T_{ijk}^{-1} x}$$

zu ersetzen, deren Tensor

$$T_{ijk}^{-1} = \begin{bmatrix} \alpha_{ijk}^{-2} & 0 & 0 \\ 0 & \beta_{ijk}^{-2} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{ijk}^{-2} \end{bmatrix} \quad (4)$$

im physikalischen Raume reziprok zum Tensor

$$T_{ijk} = \begin{bmatrix} \alpha_{ijk}^2 & 0 & 0 \\ 0 & \beta_{ijk}^2 & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{ijk}^2 \end{bmatrix} \quad (5)$$

im Fourier-Raume ist, wobei $T \cdot T^{-1} = 1$ gilt. Bei Flüssigkeiten und amorphen Stoffen entartet der Tensor zu

$$T_{ik}^{-1} = \frac{1}{c_{ik}^2},$$

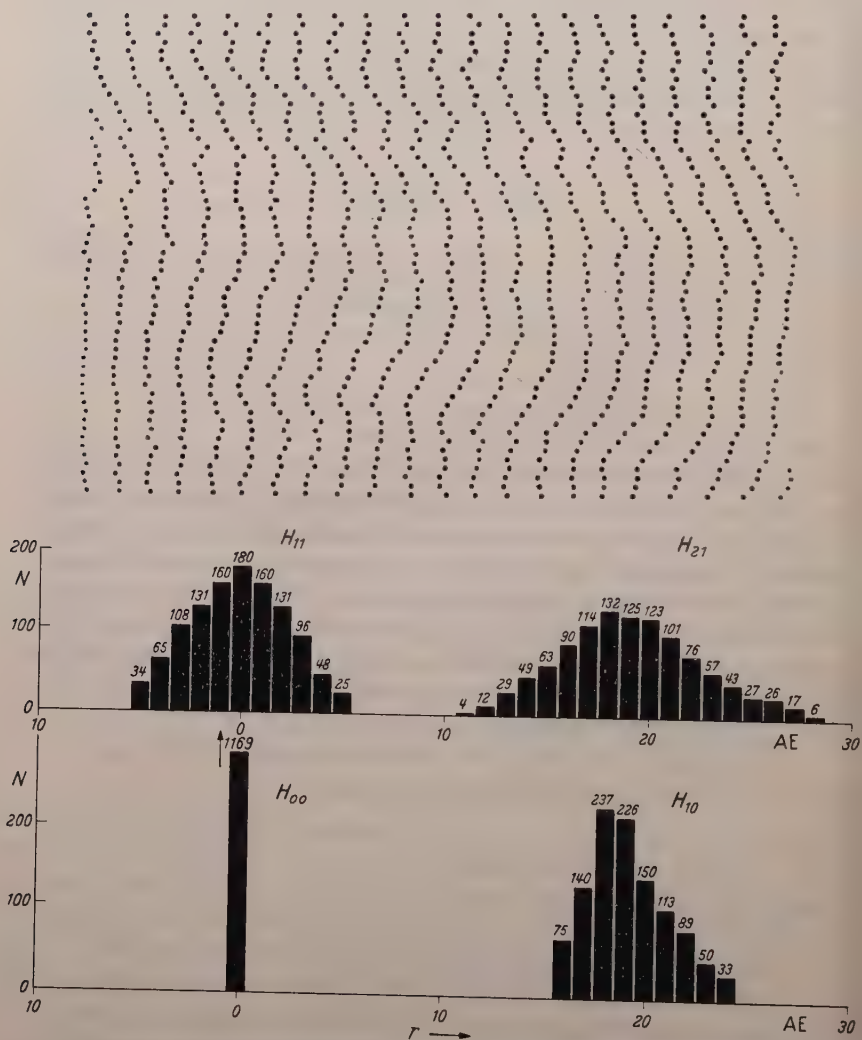


Fig. 1. Modellgitter mit statistischen Störungen und seine ausgezählte Abstandsstatistik nach HOSEMAN und SCHOKNECHT (1956). Abszisse ist der Abstand r

wenn $c_{ik}^2 = 2(\delta r_{ik})^2$ das doppelte Schwankungsquadrat des mittleren Abstandes $\bar{x}_i - \bar{x}_k$ ist. Fassen wir Abstände mit gleichen $\widehat{Q}_i \widehat{Q}_k$ zusammen,

so können wir jetzt für $\tilde{\varrho}_\infty$ schreiben

$$\tilde{\varrho}_\infty = \sum_i^N \sum_k^N \overbrace{\varrho_i(x) \varrho_k(-x)}^{e^{-x T_{ik}^{-1} x}} \frac{1}{(\alpha \beta \gamma)_{ik} \pi^{\frac{3}{2}}} P[x - (x_i - x_k)]. \quad (6)$$

Durchstrahlen wir die Substanz mit Röntgenstrahlen, so nimmt die Richtung des Abstandes $\overline{x_i - x_k}$ jede beliebige Orientierung gegen den Röntgen-Primärstrahl ein. Wir können deshalb über den ganzen Raumwinkel mitteln, d. h. Kugelsymmetrie einführen. Dies läßt sich für ϱ_i ohne weiteres erledigen, weil die Elektronendichte im Atom a priori kugelsymmetrisch angenommen wird. Dagegen ist die Gaußkurve in guter Näherung durch

$$\frac{1}{(\alpha \beta \gamma)_{ik} \pi^{\frac{3}{2}}} e^{-x T_{ik}^{-1} x} \approx \frac{1}{(c_{ik} \sqrt{\pi})^3} e^{-\left(\frac{r}{c_{ik}}\right)^2} \quad (7)$$

zu ersetzen. Dann geht Gl. (6) über in

$$\tilde{\varrho}_\infty = \sum_i^N \sum_k^N \overbrace{\varrho_i(r) \varrho_k(r)}^{e^{-\left(\frac{r}{c_{ik}}\right)^2}} \frac{1}{c_{ik}^3 \pi^{\frac{3}{2}}} P(r - \bar{r}_{ik}). \quad (8)$$

Wenden wir jetzt in bekannter Weise den eindimensionalen Fourier-Operator

$$\mathfrak{F}_1 = \frac{2}{u} \int_0^\infty r \dots \sin 2\pi u r dr$$

an, wo $u = 2 \sin \vartheta / \lambda$ der Betrag des Vektors im Fourier-Raume ist, so sind

$$\begin{aligned} \mathfrak{F}_1 \tilde{\varrho}_\infty(r) &= I(u) && \text{die Streuintensität und} \\ \mathfrak{F}_1 \varrho(r) &= f(u) && \text{der Atomformfaktor}^*. \end{aligned}$$

Sehen wir von uninteressanten Faktoren ab, so ist die gesamte Streuintensität

$$\left. \begin{aligned} I &= \sum_i^N \sum_k^N f_i f_k e^{-\frac{(\pi c_{ik} u)^2}{2\pi u \bar{r}_{ik}}} \\ &= \sum_i^M f_i^2 + \sum_{i \neq k}^M \sum_k^N f_i f_k e^{-\frac{(\pi c_{ik} u)^2}{2\pi u \bar{r}_{ik}}}, \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

wobei der erste Term über alle M -Atome im Molekül summiert wird. Für $c_{ik} = 0$ geht diese Gleichung in die Debyesche Gleichung über. Wird

* Die Gültigkeit der theoretischen Atomformfaktoren [JAMES und BRINDLEY (1931)] wurde in letzter Zeit mehrfach nachgewiesen [RENNINGER (1952), VOIGT-LAENDER-TETZNER (1956)].

nur über die Atome eines Moleküls summiert, und werden alle anderen Abstände mit einer Schwankung $c_{ik} \rightarrow \infty$ angenommen, so erhält man den Grenzfall des Gases; mit $c_{ik} = 0$ und gesetzmäßig wachsenden \bar{r}_{ik} gibt es den anderen Grenzfall des Einkristalls. Bemerkenswert dabei ist, daß die Beiträge mit Schwankung c_{ik} zur Gl. (9) für

$$u \approx \frac{2,5}{\pi c_{ik}} \quad (10)$$

verschwinden, analog der Guinier-Hosemannschen Näherung [HOSEMAN (1950)]. Bei isotropen Stoffen läßt sich im Gegensatz zu anisotropen [HOSEMAN (1952)] c_{ik} nicht aus dem Röntgendiagramm bestimmen. Für die Auswertung der Verteilungskurve wird sich die Näherungsgleichung jedoch von ganz besonderem Wert erweisen.

2. Näherung für die Intensität

In voller Analogie zur bisherigen Betrachtung bei Atomen suchen wir jetzt die Streuintensität von Molekülen, die aus mehreren verschiedenen Atomen aufgebaut sind. Eine Molekülverteilung mit L -Molekülen

$$\varrho_M(x) = \sum_{i=1}^L \overbrace{\varrho_{Mi}(x)} P(x - x_i),$$

deren Elektronenverteilung ϱ_{iM} für alle Moleküle gleich ist, besitzt das Faltungsquadrat

$$\overset{\sim}{\varrho}_M = \sum_i^L \sum_k^L \overbrace{\varrho_{iM}(x)} \overbrace{\varrho_{kM}(-x)} P[x - (x_i - x_k)]. \quad (11)$$

Führen wir eine Gaußsche Häufigkeitsverteilung für die Moleküle ein, so erhalten wir

$$\overset{\sim}{\varrho}_M = \sum_i^L \sum_k^L \overbrace{\varrho_{iM}(x)} \overbrace{\varrho_{kM}(-x)} \frac{e^{-x \overline{T_{ik}^{-1}} x}}{(A B \Gamma)_{ik} \pi^{\frac{3}{2}}} P[x - (x_i - x_k)] \quad (12)$$

oder kugelsymmetrisch

$$\overset{\sim}{\varrho}_M(R) = \sum_i^L \sum_k^L \overbrace{\varrho_{iM}(R)} \overbrace{\varrho_{ik}(-R)} \frac{e^{-\left(\frac{R}{c_{ik}}\right)^2}}{c_{ik}^3 \pi^{\frac{3}{2}}} P(R - \bar{R}_{ik}). \quad (13)$$

Nach Fourier-Transformation erhalten wir daraus mit $\mathfrak{F}_1(\varrho_{Mi} = F(u)$, $\mathfrak{F}_1 \overset{\sim}{\varrho}_M = I(u)$

$$I(u) = \sum_i^L \sum_k^L F_i F_k e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \frac{\sin 2\pi u \bar{R}_{ik}}{2\pi u \bar{R}_{ik}}. \quad (14)$$

Wir ziehen wieder den Fall $i = k$ aus der Doppelsumme heraus:

$$I = \sum_i^L F_i^2 + \sum_{i \neq k}^L \sum_k^L F_i F_k e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \frac{\sin 2\pi u \bar{R}_{ik}}{2\pi u \bar{R}_{ik}}.$$

Der innere Molekülformfaktor ist

$$F_i^2 = \sum_1^M f_i^2 + \sum_{i \neq k}^M \sum_k^M f_i f_k \frac{\sin 2\pi u \bar{R}_{ik}}{2\pi u \bar{R}_{ik}}. \quad (15)$$

Statistische Schwankungen und Temperaturschwingungen werden im Molekül in erster Näherung vernachlässigt. Bei dem Produkt $F_i F_k$ haben wir jedoch auf die gegenseitige Orientierung der Moleküle zu achten. Wir nennen $F_i F_k = F_a^2$ den äußeren Molekülformfaktor, den wir etwa nach MENCKE (1932) über alle gegenseitigen Orientierungen gemittelt berechnen können.

Aus Gl. (14) erhalten wir zunächst *

$$I = L \left\{ F_i^2 + F_a^2 \sum_1^L e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \frac{\sin 2\pi u \bar{R}_{ik}}{2\pi u \bar{R}_{ik}} \right\}. \quad (16)$$

Nun führen wir die Näherung ein, indem wir die Summe nach dem ersten Gliede abbrechen. Das bedeutet, daß wir nur die \bar{N} nächsten Nachbarn um ein Molekül herum (1. Koordination) in die Rechnung aufnehmen. Deren mittlerer Abstand sei \bar{R} . Weiter vernachlässigen wir die Schwankung und setzen $c_{ik} = 0$. Dann gilt pro Molekül **

$$\frac{I}{L} \approx F_i^2 + \bar{N} F_a^2 \frac{\sin 2\pi u \bar{R}}{2\pi u \bar{R}}. \quad (17)$$

Mit dieser Näherung berechnen wir als Beispiel die Streuintensität des flüssigen CCl_4 (Fig. 2). Im Tetrachlorkohlenstoff wird bekanntlich ein C-Atom von vier Cl-Atomen im Abstände $1,74 \text{ \AA}$ tetraedrisch umgeben [PETERLIN (1936)]. Der C—Cl-Abstand beträgt $3,0 \text{ \AA}$. Die Lage des ersten Maximums in der experimentellen und der theoretischen Intensitätskurve stimmen dann überein, wenn $\bar{N} = 6$ und $\bar{R} = 5,8 \text{ \AA}$ groß

* Der Faktor 2, der sich aus der Doppelsumme für Abstände $i \neq k$ ergibt, ist in F_a^2 enthalten.

** Diese Gleichung ist dem Ergebnis von FOURNET und GUINIER (1949) äquivalent. Die Streuintensität des Argons, die von den Verfassern als Beispiel berechnet und mit der experimentellen Kurve verglichen wird, läßt sich nach Gl. (17) rein formell durch

$$\frac{I}{L} \approx f_A^2 \left(1 + 2\bar{N} \frac{\sin 2\pi u \bar{R}}{2\pi u \bar{R}} \right)$$

berechnen. Dabei sind f_A^2 der Atomformfaktor des Argon-Atoms, \bar{N} die mittlere Anzahl und \bar{R} der mittlere Abstand der nächstbenachbarten Atome in der ersten Koordination.

sind*. Der Abstand zwischen nächstbenachbarten Molekülen beträgt also $5,8 \text{ \AA}$, während man nach GOLDSCHMIDT (1923) mit den Atomradien $R_C = 0,77 \text{ \AA}$ und $R_{C_1} = 1,07 \text{ \AA}$ einen Berührungsabstand der kugelförmigen Moleküle von $5,68 \text{ \AA}$ errechnet.

Bis auf die Höhen der Ordinaten erreichen wir mit dieser Näherung bereits eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Lediglich das Maximum bei $u = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$ zeigt an, daß die Struktur des flüssigen CCl_4 differenzierter ist, und eben doch nicht überall volle Drehfreiheit besteht.

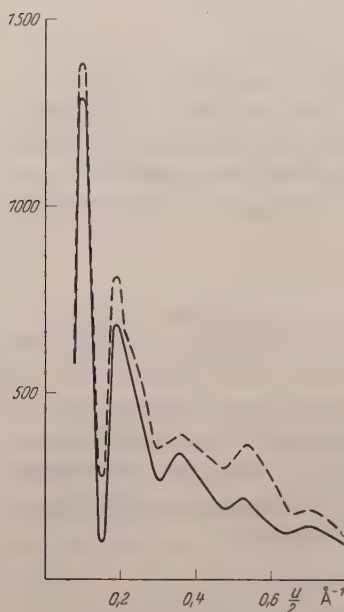


Fig. 2. Streuintensität des flüssigen Tetrachlorkohlenstoffs. - - - - Experimentell nach PIRENNE (1946). ——— Näherung mit $\bar{R} = 5,8 \text{ \AA}$, $\bar{N} = 6$

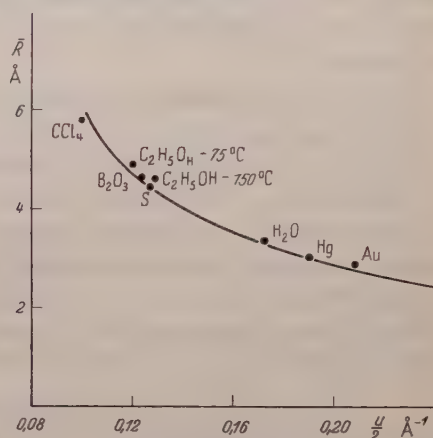


Fig. 3. Kürzester Abstand zwischen zwei Molekülen oder Atomen in Abhängigkeit von der Lage des ersten großen Intensitätsmaximums, bestimmt nach Gl. (18). Die näheren Angaben sind der Tabelle 1 zu entnehmen

Das erste Maximum bei $u = 0,2 \text{ \AA}$ wird also durch den mittleren Molekülabstand \bar{R} hervorgerufen. Das entspricht dem ersten Maximum in der $\sin 2\pi u\bar{R}/2\pi u\bar{R}$ -Kurve bei $2\pi u_{\max}\bar{R} = 7,725$. Daraus läßt sich aber wieder näherungsweise

$$\bar{R} \approx \left\{ \frac{7,7}{2\pi u_{\max}} - 0,3 \right\} \text{ \AA} \quad (18)$$

für den kürzesten mittleren Molekülabstand ableiten. Das Korrekturglied $-0,3 \text{ \AA}$ ist durch den Faktor F_a^2 bedingt, der das Maximum der $\sin 2\pi u\bar{R}/2\pi u\bar{R}$ -Kurve etwas verschiebt. Es gilt nur für molekulare Substanzen.

* Bemerkenswert ist, daß man auch beim flüssigen Quecksilber $\bar{N} = 6$ findet. Die Ähnlichkeit beider Streukurven wird bereits dadurch evident.

Die Güte dieser Näherung ist aus Fig. 3 ersichtlich. Abszisse ist darin u , Ordinate \bar{R} und die Meßpunkte sind mit der chemischen Formel der jeweiligen Substanz bezeichnet. Form der Substanz, Versuchstemperatur und Quellennachweis finden sich in der darunterstehenden Tabelle 1. Die Meßpunkte beziehen sich einerseits auf die Lagen u_m der

Tabelle 1. *Angabe von Substanzform, Versuchstemperatur und Quellenangabe zur vorstehenden Fig. 3*

Substanz	Substanzform	Temperatur	Quelle
Au . . .	flüssig	1063° C	HENDUS (1947)
B ₂ O ₃ . .	glasig	Zimmertemperatur	WARREN und MORNINGSTAR (1935)
C ₃ H ₅ OH .	flüssig	— 75° C	HARVEY (1939)
C ₂ H ₅ OH .	glasig	— 150° C	PRIETZSCHK (1941)
CCl ₄ . . .	flüssig	Zimmertemperatur	PETERLIN (1936)
Hg	flüssig	Zimmertemperatur	HENDUS (1948)
H ₂ O . . .	flüssig	+ 1,5° C	WARREN und MORGAN (1938)
S	fest	Zimmertemperatur	WARREN und GINGRICH (1934)

ersten großen Maxima in verschiedenen in der Literatur veröffentlichten Intensitätsdiagrammen, zum anderen beziehen sie sich auf die kürzesten Abstände im Mittel \bar{R} zwischen zwei Molekülen bzw. Atomen in den Substanzen, die von den Verfassern bestimmt wurden. Die Lage der Meßpunkte zur \bar{R} -Kurve ist überraschend gut.

3. Die Gleichung der Verteilungskurve

Kennzeichnet man die eindimensionale Fourier-Inverstransformation durch das Symbol

$$\mathfrak{F}_1^{-1} = \frac{2}{r} \int_0^\infty u \dots 2\pi u r du,$$

so sind Faltungsquadrat der Elektronendichte und Streuintensität durch die Gleichungen

$$\mathfrak{F}_1^2 \varrho_\infty^2 = I \quad \text{und} \quad \mathfrak{F}_1^{-1} I = \varrho_\infty^2$$

miteinander verknüpft. Während sich der erste Vorgang mindestens für begrenzte Statistiken ohne weiteres ausführen läßt, ist das beim zweiten Vorgang in den meisten Fällen nicht möglich. Da man nur bis zu einer endlichen Grenze u_0 messen kann, wird das experimentelle ϱ^2 um den dadurch entstehenden Abbrucheffekt ungenau. Außerdem interessiert man sich in der Praxis auch gar nicht für die viel zu verschmierte Statistik der Elektronen, sondern vielmehr für die Statistik der Atome. Aus diesem Grunde müssen wir nicht die eben hingeschriebene Elektronendichteverteilung, sondern die Atomverteilung ϱ^2 bestimmen, die mit dem Abbrucheffekt belastet ist.

Man entfernt dazu aus Gl. (9) die Atomformfaktoren, indem man durch

$$\bar{f}^2(u) = \left(\frac{\sum f_i(u)}{\sum z_i} \right)^2 \quad (19)$$

[JAGODZINSKI (1947)] dividiert. Mit einigen Umstellungen erhält man nach Gl. (9)

$$i(u) = \frac{I - \sum f_i}{\bar{f}^2} = \sum_{i \neq k}^M \sum_k^N K_i K_k e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \frac{\sin 2\pi u \bar{r}_{ik}}{2\pi u \bar{r}_{ik}}, \quad (20)$$

wobei $K_i = f_i / \bar{f}$ zunächst in erster Näherung konstant sei. Dadurch erhält jeder Beitrag zur Doppelsumme ein bestimmtes Gewicht. Wir erhalten dann

$$\bar{\rho}^2 = \frac{2}{r} \int_0^{u_0} u i(u) \sin 2\pi u r du. \quad (21)$$

Gl. (21) ist der Integralausdruck für die Verteilungskurve. Setzen wir hierin $i(u)$ nach Gl. (20) ein, so erhalten wir mit Hilfe partieller Integration und bei Multiplikation mit $4\pi r^2$:

$$4\pi r^2 \bar{\rho}^2 = \sum_{i \neq k}^M \sum_k^N 2K_i K_k \frac{r}{\bar{r}_{ik}} \left\{ u_0 e^{-(\pi c_{ik} u_0)^2} \frac{\sin 2\pi u_0 (r - \bar{r}_{ik})}{2\pi u_0 (r - \bar{r}_{ik})} + \right. \\ \left. + \frac{\pi c_{ik}^2}{4(r - \bar{r}_{ik})} \int_0^{u_0} u e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \sin 2\pi u (r - \bar{r}_{ik}) du \right\}. \quad (22)$$

Dies ist die Gleichung der Verteilungskurve*. Sie besteht aus zwei wesentlich verschiedenen Termen: während der erste mit steigender Schwankung (wachsendem c_{ik}) allmählich verschwindet, macht sich der Einfluß des zweiten Terms mit größer werdendem c_{ik} immer mehr bemerkbar. Es müssen also zwei Grenzfälle auftreten, in denen das eine oder das andere Glied gänzlich verschwunden ist. Daneben existiert der allgemeine Fall, daß beide Terme einen Beitrag zu $4\pi r^2 \bar{\rho}^2$ liefern. Diese drei Möglichkeiten wollen wir jetzt diskutieren.

Ist zunächst $c_{ik} = 0$, so bleibt von Gl. (22)

$$4\pi r^2 \bar{\rho}^2 = \sum_{i \neq k}^M \sum_k^N 2K_i K_k \frac{r u_0}{\bar{r}_{ik}} \frac{\sin 2\pi u_0 (r - \bar{r}_{ik})}{2\pi u_0 (r - \bar{r}_{ik})}. \quad (23)$$

Jeder Summand dieser Kurve erstreckt sich über die ganze r -Achse. Für $r = 0$ ist er stets null, für $r \rightarrow \infty$ oszilliert er zwischen $\pm K_i K_k / \pi \bar{r}_{ik}$.

* Da Flüssigkeiten stets zentrosymmetrisch sind und ihre Struktur in Polarkoordinaten beschrieben wird, entfällt der Anteil mit $r + \bar{r}_{ik}$ in Gl. (22), der bei der Lösung des Integrals Gl. (21) auftritt.

hin und her, verschwindet also nie. Die Fläche unter dem Hauptmaximum bei $r = r_{ik}$ ist entgegen der alten Theorie [GLOCKER (1948)]

$$F = \frac{4}{\pi} \text{Si}(\pi) K_i K_k, \quad (24)$$

wenn Si der Integralsinus ist. Sie ist unabhängig von u_0 . Jeder Summand schneidet die r -Achse erstmalig bei

$$r' = \bar{r}_{ik} \pm \frac{1}{2u_0}. \quad (25)$$

Man kann also aus der Breite isolierter Maxima direkt auf das Vorhandensein von Schwankungen schließen. Denn dann ist $r' \geq r_{ik} \pm 1/2u_0$, das Maximum ist also breiter.

Der zweite Extremfall ist für $c_{ik} \geq 2,5/\pi u_0$ gegeben. Nach Gl. (10) verschwinden die Intensitätsanteile der mit c_{ik} behafteten Anteile noch innerhalb des Meßbereichs. Es ist so erlaubt, in Gl. (21) als obere Grenze des Integrals $u_0 = \infty$ einzusetzen; man erhält dann

$$4\pi r^2 \bar{Q}^2 = \sum_{i \neq k}^M \sum_{k}^N \frac{K_i K_k}{c_{ik} \pi^{\frac{1}{2}} \bar{r}_{ik}} e^{-\left(\frac{r - \bar{r}_{ik}}{c_{ik}}\right)^2}. \quad (26)$$

Jetzt erscheinen wieder Gauß-Kurven. Diese Lösung besitzt die größte Ähnlichkeit mit Gl. (8).

Der dritte Spezialfall, oder besser der allgemeine Fall, liegt zwischen diesen beiden Extremen. Für $c_{ik} < 2,5/\pi u_0$ müssen wir in Gl. (22) integrieren. Wir setzen $\pi u c_{ik} = y$, $dy = \pi c_{ik} du$ und $\beta = 2(r - r_{ik})/c_{ik}$ und erhalten für das Integral im zweiten Term der Gl. (22) bis auf den Faktor $\frac{K_i K_k r}{2 \bar{r}_{ik}}$

$$B(\beta) = \int_0^{y_0} y e^{-y^2} \frac{\sin \beta y}{\beta} dy. \quad (27)$$

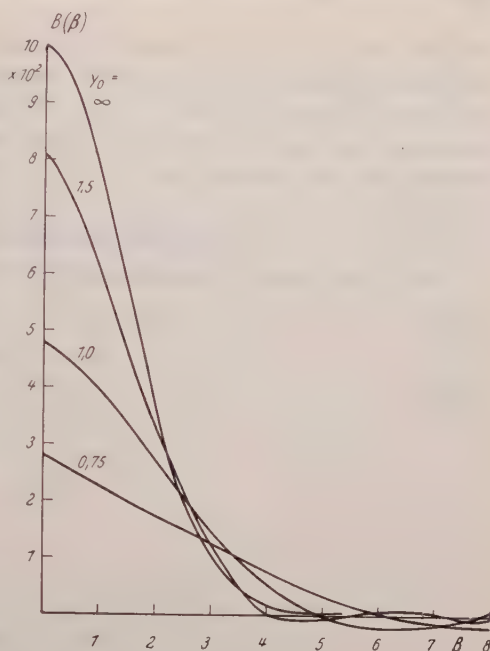


Fig. 4. Die Kurven $B(\beta)$ mit $y_0 = \pi u_0 c_{ik}$ als Parameter

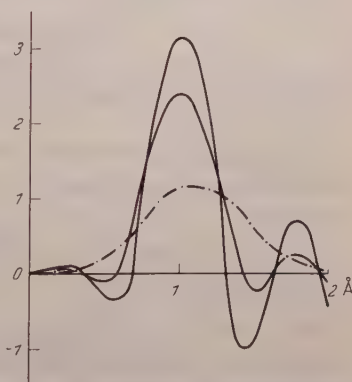


Fig. 5. Verteilungskurve zweier gleichstark streuender Atome im Abstände 1. $u_0 = 5/\pi = 1,6 \text{ \AA}^{-1}$. — Schwankung $c_{ik} = 0$ und Schwankung $c_{ik} = 0,2 \text{ \AA}$ (14%); - - - Schwankung $c_{ik} = 0,5 \text{ \AA}$ (35%)

Das Integral kann man numerisch lösen. $B(\beta)$ ist in Fig. 4 mit y_0 als Parameter gegen β aufgetragen. In Fig. 5 sind die Verteilungskurven für einen Abstand 1 \AA mit $K_1 = K_2 = 1$ und $u_0 = 5/\pi$ für verschieden große Schwankungen eingezeichnet. Man erkennt sehr gut den Übergang der $\sin x/x$ - zur Gauß-Kurve.

4. Der Einfluß des Mittelungsfehlers

Wir haben bisher angenommen, daß die K_i und K_k konstant sind. Das ist nicht der Fall. Vielmehr gilt

$$K_i = \bar{K}_i + \varepsilon_i(u), \quad (28)$$

wobei

$$\bar{K}_i = \frac{\int_0^{u_0} K_i du}{\int_0^{u_0} du} \quad (29)$$

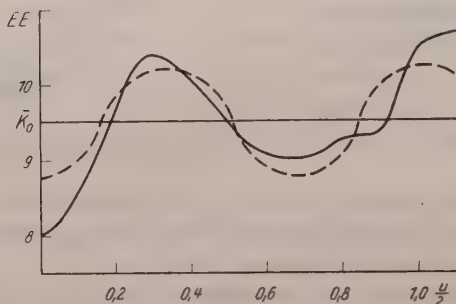


Fig. 6. $K_0(u)$ für das Sauerstoffatom im Äthylalkohol. — $K_0(u)$ nach Gl. (19); - - - - - Näherung nach Gl. (33). Der Mittelwert beträgt $\bar{K}_0 = 9,51$ EE. Die Ordinate ist in Elektroneneinheiten (EE) aufgetragen

der konstante Mittelwert und $\varepsilon_i(u) = K_i - \bar{K}$ die Differenz zwischen K_i und \bar{K}_i sind. Setzt man den Ausdruck für K_i in Gl. (20) ein, so erhält man mit

$$K_i K_k = (\bar{K}_i + \varepsilon_i) (\bar{K}_k + \varepsilon_k) \approx \bar{K}_i \bar{K}_k + \bar{K}_i \varepsilon_k + \bar{K}_k \varepsilon_i \quad (30)$$

den Ausdruck

$$i(u) = \sum_{i \neq k}^M \sum^N \bar{K}_i \bar{K}_k e^{-(\pi c_{ik} u)^2} \frac{\sin 2\pi u \bar{r}_{ik}}{2\pi u \bar{r}_{ik}} + \eta(u). \quad (31)$$

$\eta(u)$ ist der Mittelungsfehler. Die Fourier-Inverstransformierte führt nun wieder zu der bekannten Gl. (22), in der jetzt nur $K_i K_k$ durch $\bar{K}_i \bar{K}_k$ zu ersetzen sind, und den wir deshalb nicht noch einmal anschreiben wollen. Hinzu tritt der Fehleranteil

$$E(r) = \frac{2}{r} \int_0^{u_0} u \eta(u) \sin 2\pi u r du, \quad (32)$$

der gesondert bestimmt werden muß. Dazu versucht man am besten, $\varepsilon_i(u)$ durch geeignete einfach zu transformierende Funktionen zu ersetzen.

Als Beispiel betrachten wir die Verteilungsfunktion des Abstandes $r_{ik} = 2,9 \text{ \AA}$ zweier O-Atome im Äthylalkohol [PRIETZSCHK (1941)]. Hier erhält man $K_0(u)$ durch Mittelung über ein O-, zwei C- und sechs H-Atome (Fig. 6). Der Mittelwert beträgt $\bar{K}_0 = 9,51$ Elektroneneinheiten (EE). Dann läßt sich $K_0(u)$ ersetzen durch

$$K_0 \approx \bar{K}_0 + |\bar{\varepsilon}_0^2| \cos \{\alpha 2\pi u\}. \quad (33)$$

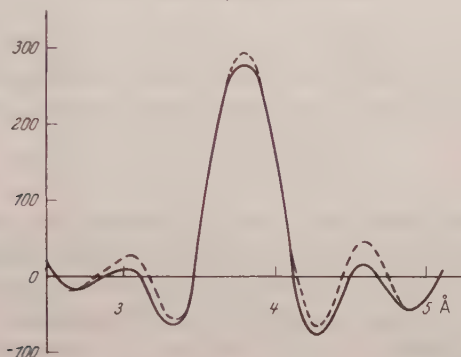


Fig. 7. Beitrag zweier O-Atome im Abstände $2,9 \text{ \AA}$ zur Verteilungskurve des Äthylalkohols $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$. $u_0 = 1,6 \text{ \AA}^{-1}$. ----- Ohne Berücksichtigung des Mittelungsfehlers; — mit Mittelungsfehler

$\alpha = 4,9$; $|\bar{\varepsilon}_0^2| = 0,36$. Setzen wir $c_{ik} = 0$, so läßt sich das Integral Gl. (32) in einfacher Weise lösen, und man erhält

$$4\pi r^2 \tilde{\varrho}' = 2\bar{K}_0^2 u_0 \frac{\sin 2\pi u_0(r - \bar{r}_{ik})}{2\pi u_0(r - \bar{r}_{ik})} + E_0(r)$$

$$\eta(u) = 4\bar{K}_0 |\bar{\varepsilon}_0^2| \cos \{\alpha 2\pi u\} \frac{\sin 2\pi u \bar{r}_{ik}}{2\pi u \bar{r}_{ik}}$$

$$E_0(r) = \frac{2\pi u_0 r}{\bar{r}_{ik}} 2|\bar{\varepsilon}_0^2| \left\{ \frac{\sin 2\pi u_0 [\alpha + (r - \bar{r}_{ik})]}{2\pi u_0 [\alpha + (r - \bar{r}_{ik})]} + \frac{\sin 2\pi u_0 [\alpha - (r - \bar{r}_{ik})]}{2\pi u_0 [\alpha - (r - \bar{r}_{ik})]} \right\}.$$

In Fig. 7 ist das Ergebnis der Rechnung aufgetragen. Der Mittelungsfehler wirkt sich praktisch nur auf die ersten Nebenmaxima aus, beträgt hier aber etwa 50%. Es kann sehr störend wirken, wenn sich mehrere Mittelungsfehler überlagern.

5. Einfluß des Meßfehlers

Wir haben bisher bei unserem Problem experimentelle Meßfehler ausgeschlossen. Wir wollen jetzt versuchen, die Auswirkung der Meßfehler auf die Verteilungskurve wenigstens abzuschätzen.

An Kristallen lassen sich Röntgen-Intensitätsmessungen bis auf etwa 1% genau ausführen [WITTE und WÖLFEL (1955)]. Bei den wesentlich schwächeren Intensitäten der Flüssigkeiten und amorphen Stoffe muß man mit höheren Meßfehlern rechnen, zu denen weitere Fehler durch Umzeichnen, mechanische Fourier-Transformation usw. hinzukommen. Im allgemeinen ist wohl ein Fehler von 3 bis 5% zu erwarten.

Die Meßpunkte der Intensitätskurve sind ungenau einmal hinsichtlich ihrer Lage u , zum anderen mit ihrem Betrage I . Aus Gl. (18) folgt

$$\frac{dr}{r} = \frac{du}{u},$$

d.h., die Lagen der Extrema in der $4\pi r^2 \tilde{Q}'$ -Kurve besitzen den gleichen relativen Fehler wie die Extrema der $I(u)$ -Kurve. Damit erfahren aber auch die Maxima der Verteilungskurve eine Verbreiterung um

$$dr = \pm \frac{r}{u} du, \quad (34)$$

so daß bei einem isolierten Maximum — meist dem ersten Maximum der Verteilungskurve — nicht entschieden werden kann, ob eine statistische Schwankung vorliegt oder nicht. Jede Atomlage besitzt damit eine Schwankung in der experimentellen Verteilungskurve, die mindestens die Fehlerbreite besitzt.

Wie wirkt sich andererseits der Meßfehler auf die Höhen der Maxima in der Verteilungskurve aus? Im Punkte $r = r_{ik}$ gilt nach Gl. (22)

$$4\pi \bar{r}_{ik}^2 \tilde{Q}' = 2n K_i K_k \left\{ u_0 e^{-(\pi c_{ik} u_0)^2} + \frac{\pi^2 c_{ik}^2}{2} \int_0^{u_0} u^2 e^{-(\pi c_{ik} u)^2} du \right\}, \quad (35)$$

wenn n die Anzahl der Atome bei $r = r_{ik}$ ist. Sieht man vom Fehler du_0 ab, so ist dieser Ausdruck von dr und damit auch von du unabhängig. Hat nun $i(u)$ den konstanten mittleren Fehler $\overline{di(u)} = p\%$, so hat auch $4\pi r^2 \tilde{Q}'$ den mittleren prozentualen Fehler $\pm p\%$. Aber auch dies ist lediglich eine Abschätzung.

Zusammenfassung

Für die Streuintensität von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen läßt sich eine Gleichung ableiten, die der statistischen Natur dieser Materie entspricht und für verschwindende statistische Schwankungen in die Intensitätsgleichung DEBYES übergeht.

Durch Fourier-Inverstransformation der Streuintensität läßt sich die Gleichung der Verteilungskurve gewinnen. Sie läßt sich auch für endliche Integrationsgrenzen lösen, und man erhält einen Ausdruck für die

statistische Verteilung der Atome in der durchstrahlten Substanz. Es zeigt sich dabei, daß die Schwankungen der Atomlagen die Lösung dieser Gleichung wesentlich beeinflussen. Wegen der nur endlichen Integrationsgrenze erscheint in dieser Lösung jeder Abstandsbeitrag in Form einer $\sin x/x$ -Kurve, die sich über die ganze r -Achse ausbreitet und alle anderen Abstände stört. Atomlagen mit Schwankungen besitzen breitere und flachere Hauptmaxima als die Kurven ohne Schwankung. Erreichen die Schwankungen einen bestimmten Betrag, so gehen die $\sin x/x$ -Kurven in Gaußsche Verteilungskurven über.

Es treten demnach drei verschiedene Typen von Abstandsbeiträgen in der Verteilungskurve auf:

Abstände ohne Schwankung,

Abstände mit Schwankung $c_{ikh} < \frac{2,5}{\pi u_0}$,

Abstände mit Schwankung $c_{ikh} \geq \frac{2,5}{\pi u_0}$.

Mit wachsendem r wechseln diese drei Typen in der Verteilungskurve in dieser Reihenfolge, wobei c_{ikh} mit der Statistik mit \sqrt{r} größer wird. Wegen der Meßfehler lassen sich die Schwankungen nur bis auf die Fehlerbreite genau bestimmen. Außerdem beeinflussen die Mittelungsfehler bei mehratomigen Stoffen die Werte der Verteilungskurve. Vernachlässigt man bei der Auswertung in erster Näherung die Schwankungen, so ist dies nur für kleine r erlaubt, und man findet dann lediglich Zahl und mittleren Abstand der Atome oder Moleküle in der ersten Koordination.

Bei mehratomigen Substanzen werden hauptsächlich die ersten Nebenextrema jedes Abstandsbeitrages verflacht. Der experimentelle Meßfehler führt schließlich zu einer Verbreiterung der Maxima, so daß innerhalb dieser Fehlerbreite die Größen der Abstandsschwankungen nicht aus der Verteilungskurve bestimmt werden können.

Die Arbeit wurde in Stuttgart durchgeführt. Herrn Professor Dr. R. HOSMANN, Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Berlin-Dahlem, möchte ich an dieser Stelle für Diskussionen und manchen guten Rat herzlich danken.

Literatur

- DEBYE, P.: Ann. Phys. **46**, 805 (1915). — DEBYE, P., u. H. MENCKE: Ergebn. techn. Röntgenkunde **2**, 1 (1931). — EWALD, P.: Proc. Phys. Soc. **12**, 167 (1940). — FOURNET, G., et A. GUINIER: C. R. Acad. Sci. Paris **228**, 66 (1949). — GLOCKER, R.: Ergebn. exakt. Naturw. **22**, 186 (1948). — GOLDSCHMIDT, V.M.: Geochemische Verteilungsgesetze der Elemente. Kristiania 1923. — GREEN, H.S.: Molecular Theory of Fluids. Amsterdam 1952. — HARVEY, G.G.: J. Chem. Phys. **7**, 878 (1939). — HENDUS, G.: Z. Naturforsch. **2a**, 505 (1947); **3a**, 416 (1948). — HOSMANN, R.: Z. Physik **127**, 16 (1949); **128**, 1 (1950). — Kolloid-Z. **125**, 149 (1952). —

HOSEMAN, R., and S. N. BAGCHI: *Nature, Lond.* **171**, 785 (1953). — HOSEMAN, R., u. G. SCHOKNECHT: *Forschungsber. d. Wirtsch.- u. Verkehrsmin. Nordrhein-Westfalen* Nr. 173, 1956. — JAGODZINSKI, H.: *Z. Naturforsch.* **2a**, 465 (1947). — JAMES, R. W., and G. W. BRINDLEY: *Phil. Mag.* **12**, 81 (1931). — KARLE, J. and L.: *J. Chem. Phys.* **18**, 957 (1950). — KIRKWOOD, J. G., V. A. LEWINSON and B. J. ALDER: *J. Chem. Phys.* **20**, 929 (1952). — LAUE, M. v.: *Röntgenstrahlinterferenzen*. Leipzig 1948. — MENCKE, H.: *Phys. Z.* **33**, 593 (1932). — PETERLIN, A.: *Phys. Z.* **37**, 43 (1936). — PIRENNE, G.: *The Diffraction of X-rays and Electrons by free Molecules*. Cambridge 1946. — PRIETZSCH, A.: *Z. Physik* **117**, 482 (1941). — RENNINGER, M.: *Acta crystallogr.* **5**, 711 (1952). — RICHTER, H., H. BERCKHEMER u. G. BREITLING: *Z. Naturforsch.* **9a**, 236 (1954). — RICHTER, H., G. BREITLING u. F. HERRE: *Z. angew. Phys.* **8**, 433 (1956). — VOIGTLAENDER-TETZNER, G.: *Naturwiss.* **42**, 95 (1955). — Diss. Berlin 1956. — WARREN, B. E., and N. S. GINGRICH: *Phys. Rev.* **46**, 368 (1934). — WARREN, B. E., and J. MORGAN: *J. Chem. Phys.* **6**, 666 (1938). — WARREN, B. E., and O. MORNINGSTAR: *Phys. Rev.* **47**, 808 (1935). — WITTE, H., u. H. WÖLFEL: *Z. phys. Chem., N. F.* **3**, 296 (1955). — ZERNICKE, F., u. J. A. PRINS: *Z. Physik* **41**, 184 (1927).

Aus dem Forschungslaboratorium der Siemens-Schuckert-Werke Erlangen
und dem Institut für Experimentalphysik der Universität Kiel

Über das Auftreten von Dampfstrahlen in Kohlelichtbögen hoher Stromstärken. I

Von

R. WIENECKE

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 4. November 1957)

Die seit langem bekannte Erscheinung, daß sich in Kohlelichtbögen hoher Stromstärke innerhalb des normalen Bogenkerns ein neuer Kontrast in Form eines hell leuchtenden Fadens ausbildet, wird auf die Ausbildung von Dampfstrahlen des Kathodenmaterials zurückgeführt. Die Zahl der von der Kathode „brausenartig“ ausgehenden Dampffäden nimmt oberhalb 500 Amp linear mit der Stromstärke zu. Die Geschwindigkeit in den einzelnen „Fäden“ muß erheblich sein, da sie einer Krümmung durch ein äußeres Magnetfeld einen großen Widerstand entgegensetzen und feine senkrecht zur Achse durch den Bogen geschossene Wasserstrahlen eine Richtungsablenkung erfahren.

I. Einführung

Bei der Entwicklung von Scheinwerferbögen machten GUILLERY und ZILL wie auch die Brüder BECK [1] in den Jahren 1941 bis 1945 die Beobachtung, daß im Kern des schon vielfach untersuchten Hochstromkohlelichtbogens ein neuer Kontrast in Form eines hell weiß leuchtenden Fadens auftritt, wenn man den Bogenstrom auf über 900 Amp steigert. Zum Unterschied von der „kontrahierten“ Säule — dem Bogenkern — nannte man damals die Erscheinung die „überkontrahierte Säule“, konnte aber aus Zeitgründen die physikalischen Ursachen für ihr Auftreten nicht näher untersuchen. KING [2] vermutete 1954, daß bei den hohen Strömen die Temperatur in der Bogenachse so hoch ist, daß die Einfachionisation des Bogengases bereits abgeschlossen und eine merkliche Doppelsonionisation (Bildung doppelt geladener Ionen) schon vorhanden ist, was nach seiner Ansicht die Ausbildung eines zweiten Minimums der Wärmeleitfähigkeit — entsprechend einem ersten bei beendeter Dissoziation und beginnender Einfachionisation — zur Folge hätte. Wegen der kleinen Wärmeleitfähigkeit müßte dann in diesem Temperaturbereich ein großer Temperaturgradient vorhanden sein, was wiederum einen erhöhten optischen Kontrast zur Folge hätte.

Nach noch unveröffentlichten Berechnungen von F. BURHORN [3] für die Wärmeleitfähigkeit des Stickstoff-Plasmas bis zu hohen Temperaturen ist nicht mit einem wesentlichen Beitrag der Diffusion von

Ionisationsenergie zu rechnen, weil die ambipolare Diffusion der Ladungsträger durch den großen Stoßquerschnitt zwischen Ionen und Neutralatomen so stark behindert wird, daß die reine Elektronenleitfähigkeit bei weitem überwiegt. Dementsprechend ist kein ausgeprägtes Maximum oder gar ein anschließendes Minimum, das auf die Ionisationsvorgänge zurückzuführen wäre, zu erwarten.

Aus diesem Grund erschien uns der Kingsche Erklärungsversuch nicht ausreichend für die Deutung des Effektes zu sein. Wir haben daher neue Untersuchungen über das Auftreten, das Verhalten und die Entstehungsursachen der „überkontrahierten Säule“ angestellt, worüber im folgenden berichtet werden soll.

II. Untersuchungsanordnung

Die wesentliche Schwierigkeit, einen Kohlelichtbogen bei Stromstärken über 450 Amp stabil zu brennen, besteht darin, das nach kurzer Brennzeit des Bogens einsetzende Wendeln zu verhindern. Dieses

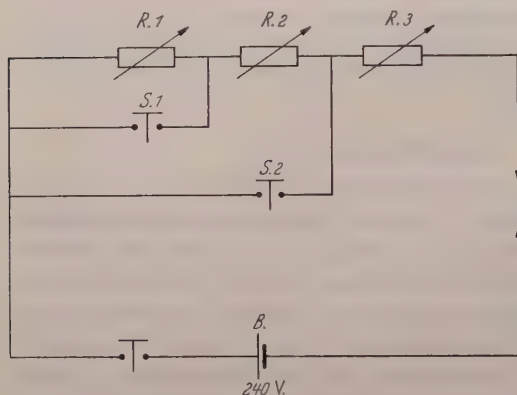


Fig. 1. Schaltung des Bogenkreises

Wendeln besteht in einer spiralförmigen Bewegung der Bogensäule und kommt nach GUILLERY [1] dadurch zustande, daß sich der Bogen durch Sublimation der Kathodenkohle bei hohen Strömen nach kurzer Zeit eine „Wanne“ in die Kathodenoberfläche gebrannt hat. Wird dann der Ansatzpunkt des Bogens auf der Kathode durch irgendeine zufällige Störung auf den Rand dieser „Wanne“ getrieben, so zwingt ihn das jetzt inhomogene Eigenmagnetfeld des Bogenstromes zu einer Rotation auf ihrem Rand. Diese überträgt sich auf die ganze Bogensäule und ruft die spiralförmige mit lautem Pfeifen verbundene Bewegung hervor. Da es für unsere Untersuchungen genügte, wenn der Bogen einige Sekunden ruhig brannte, brauchte keine besondere Anordnung zur Verhinderung des Wendelns getroffen zu werden, sondern es konnte das Zeitintervall zwischen Zündung des Bogens und Beginn des Wendelns ausgenutzt werden, das ja erst dann einsetzen kann, wenn genügend Kathodenmaterial zur Ausbildung einer Wanne sublimiert ist. Wir haben daher die in Fig. 1 dargestellte einfache Schaltung benutzt: Nach dem Zünden brannte der aus einer Batterie B mit 240 V Klemmenspannung gespeiste

eine zufällige Störung auf den Rand dieser „Wanne“ getrieben, so zwingt ihn das jetzt inhomogene Eigenmagnetfeld des Bogenstromes zu einer Rotation auf ihrem Rand. Diese überträgt sich auf die ganze Bogensäule und ruft die spiralförmige mit lautem Pfeifen verbundene Bewegung hervor. Da es für unsere Untersuchungen genügte, wenn der Bogen einige Sekunden ruhig brannte, brauchte keine besondere Anordnung zur Verhinderung des Wendelns getroffen zu werden, sondern es konnte das Zeitintervall zwischen Zündung des Bogens und Beginn des Wendelns ausgenutzt werden, das ja erst dann einsetzen kann, wenn genügend Kathodenmaterial zur Ausbildung einer Wanne sublimiert ist. Wir haben daher die in Fig. 1 dargestellte einfache Schaltung benutzt: Nach dem Zünden brannte der aus einer Batterie B mit 240 V Klemmenspannung gespeiste

Bogen unter Vorschaltung der drei Widerstände R_1 , R_2 und R_3 mit einem Strom von etwa 150 Amp. Hatte sich der Bogen eingebrannt, d.h. war die Anode gut durchwärmt, so wurde eine Relaisanordnung in Tätigkeit gesetzt, durch die die Schützscharter S_1 und S_2 mit einer variierbaren zeitlichen Verzögerung ($\sim 1/2$ sec) betätigt wurden. Bei Überbrückung von R_1 sprang der Bogenstrom auf etwa 500 Amp. Beim Schließen von S_2 stieg der Bogenstrom je nach Wahl von R_3 bis auf maximal 2200 Amp. Die Relaisanordnung löste ferner den Schleifenoszillographen zur Registrierung von Bogenstrom und Brennspannung, die Schmalfilmkamera und mit wählbarer Zeitverzögerung die Verschlüsse der Photokamera und des Spektrographen aus. Die Bogenanoden bestanden aus Elektrographit. Sie hatten zur Vermeidung der Anodenverdampfung einen Durchmesser von 35 mm. Der Durchmesser der Kathoden betrug 20 mm. Sie waren zur besseren Lokalisierung des Brennflecks beim Zünden an der Brennseite kegelförmig (Kegelwinkel $\sim 60^\circ$) angedreht und bestanden aus Elektro- in manchen Fällen auch aus Naturgraphit. Die Anode stand in 4 bis 5 cm Abstand coaxial über der Kathode. Es gelang mit dieser Anordnung den Bogen unterhalb 1800 Amp, die zur Schonung der Batterie auch nur selten überschritten wurden, mindestens 3 sec in günstigen Fällen sogar bis zu 10 sec stabil zu brennen, was immer zur Untersuchung der zu beobachtenden Vorgänge ausreichte.

III. Existenzbereich der „überkontrahierten Säule“

Das Auftreten der „überkontrahierten Säule“ konnten wir gleich bei den ersten Vorversuchen feststellen. Im normalen Bogenkern, dessen Durchmesser sich mit steigender Stromstärke aufweitete, war bei Stromstärken über etwa 1000 Amp ein zwar nicht starker, so doch deutlicher Kontrast visuell wahrnehmbar. Viel klarer erscheint dieser jedoch auf Photoaufnahmen, die mit einer Linhof-Kamera ($f = 24$ cm) auf sehr harte Kontrastplatten (Cranz, Repro-Ortho, 4° Sch.) aufgenommen wurden. In Fig. 2 sind zwei typische Aufnahmen bei verschiedenen Stromstärken (1400 und 490 Amp) wiedergegeben. Auf beiden Bildern ist der normale Bogenkern infolge der sehr steilen Plattengradation fast ganz unterdrückt und nur der gesuchte Kontrast ist zu sehen. In Fig. 2a ($J_B = 1400$ Amp) besteht dieser aus einer Reihe von hell leuchtenden „Fäden“, die „brausenartig“ von der Kathode auszugehen scheinen und nach zum Teil anfänglicher Krümmung geradlinig zur Anode laufen. Während die einzelnen „Fäden“ dicht über der Kathode deutlich voneinander getrennt und seitlich scharf begrenzt sind, wird ihr Aussehen um so verwaschener, je weiter man zur Anode geht. Einzelne „Fäden“ berühren sich sogar auf ihrem Wege zur Anode und bei manchen Aufnahmen wachsen alle „Fäden“ zu einem einzigen Strahl zusammen. Der Anode ist eine hell leuchtende einige Millimeter dicke Schicht vorgelagert,

die sich seitlich noch über ihre Stirnfläche fortsetzt. Dort, wo die „Fäden“ in diese Schicht einmünden, ist sie fast immer zur Kathode hin etwas ausgebuchtet. - Der Kontrast in Fig. 2b ($J_B = 490$ Amp) besteht nur aus einem



Fig. 2 a u. b. Photographische Aufnahmen des Hochstromkohlebogens, links $J_B = 1400$ Amp, rechts $J_B = 490$ Amp

einzigen „Faden“, der an der Kathode eine kegelförmige Verdickung aufweist, und dessen Intensität in Anodenrichtung deutlich abnimmt.

Die Zahl der „Kontrastfäden“ steigt oberhalb 450 Amp etwa linear von einem auf etwa 10 Fäden bei 1500 Amp an (Fig. 3). Dies bedeutet,

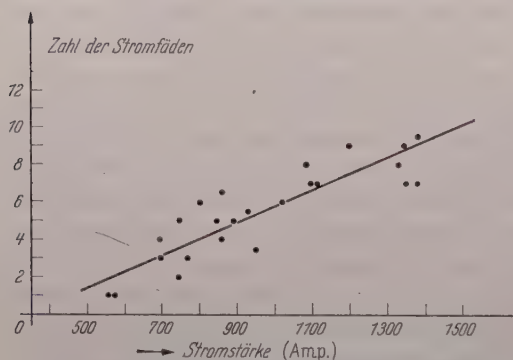


Fig. 3. Zahl der von der Kathode ausgehenden „Fäden“ in Abhängigkeit vom Bogenstrom

daß im Stromstärkebereich oberhalb 450 Amp sich im Durchschnitt bei Steigerung des Bogenstromes um 100 Amp etwa ein neuer Faden ausbildet.

Auf Filmstreifen, die mit einer 16 mm Zeiss-Ikon-Schmalfilmkamera mit 64 Bildern pro Sekunde und einer Belichtungszeit des Einzelbildes von $\frac{1}{1000}$ sec auf Perutz-

Positivfilm aufgenommen wurden, erkennt man, daß die „Fäden“ keineswegs stationär bleiben, sondern daß in stetem Wechsel einzelne Fäden

verschwinden und sich entsprechend andere neu bilden. Gleichzeitig sieht man, wie die Kathode mit steigender Brenndauer durch Verdampfung (Sublimation) kürzer wird. Die Oberfläche der Kathode zeigt, wenn der Bogenstrom vor Einsatz des Wendelns abgeschaltet wird, zahlreiche kleine Krater von etwa $\frac{1}{4}$ bis $\frac{1}{2}$ mm Durchmesser und ungefähr 1 mm Tiefe, während z. B. die Kathodenoberfläche eines 200 Amp-Bogens eine bis auf die Körnung der Kohle glatte Oberfläche aufweist.

Aus den bisher geschilderten Beobachtungen kann man zunächst zwei wichtige Schlüsse ziehen: Einmal ist im Gegensatz zu den früheren visuellen Beobachtungen die „überkontrahierte Säule“ schon bei einem Strom von etwa 500 Amp

vorhanden, tritt allerdings um so deutlicher in Erscheinung, je höher der Strom wird. Zum anderen scheidet der Erklärungsversuch von KING aus. Denn wenn ein Wärmeleitungsphänomen die Ursache für die Ausbildung der „überkontrahierten Säule“ wäre,

dürfte der Kontrast nicht derart strukturiert sein, wie es Fig. 2a zeigt, sondern es könnte sich dann nur *ein* „Superkern“ innerhalb des normalen Bogenkerns ausbilden, dessen äußere Berandung eine eindeutige Funktion der Temperatur sein müßte.

Wir wurden dagegen zu der sich später bestätigenden Vermutung geführt, daß es sich bei der „überkontrahierten Säule“ um Dampfstrahlen des Kathodenmaterials handelt. Mit diesem Postulat lassen sich alle bisher beschriebenen Beobachtungen ohne Schwierigkeiten in Einklang bringen. Für diese Deutung spricht auch, daß der Effekt gerade in dem Stromstärkebereich zu erscheinen beginnt, für den GUILLEY [4] den Beginn der Kathodensublimation nachweisen konnte. Auch die oberhalb 500 Amp wieder ansteigende Stromspannungscharakteristik (Fig. 4), die nach einem von FINKELNBURG [1] angegebenen Verfahren gemessen wurde, gibt einen deutlichen Hinweis für die mit der Stromstärke steigende Verdampfung der Kathode, denn die hierzu notwendige Energie muß sich in einer Erhöhung der Brennspannung bemerkbar machen.

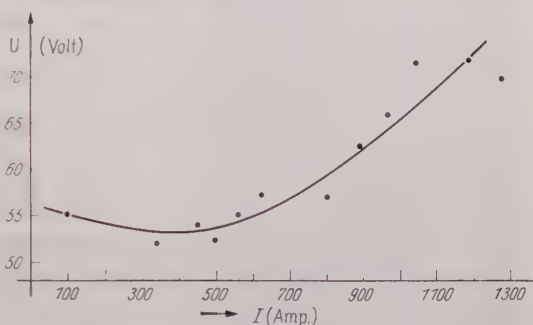


Fig. 4. Strom-Spannungskennlinie des Hochstromkohlebogens

IV. Spektroskopische Untersuchungen

Nur spektroskopische Untersuchungen konnten uns den Beweis erbringen, daß die „überkontrahierte Säule“ tatsächlich aus dem Dampf

des Kathodenmaterials besteht. Spektralaufnahmen im Sichtbaren und UV, bei denen der Bogen verkleinert auf den senkrecht zur Bogenachse



Fig. 5 a u. b. UV-Spektren eines Hochstromkohlebogens. Spalt senkrecht zur Bogenachse, a Bogen verkleinert auf den Spalt abgebildet; b Bogen vergrößert auf den Spalt abgebildet

liegenden Spektrographenspalt so abgebildet wurde, daß dieser einen Querschnitt der gesamten Bogensäule dicht über der Kathode erfaßte, zeigen (Fig. 5 a) drei durch ihre verschiedene Strahlung gekennzeichnete Bereiche der Bogensäule. Ganz außen treten neben wenigen Atom- und Ionen-Linien einzelner Elemente im wesentlichen die Banden des CN-Moleküls in Erscheinung. Nach innen schließt sich ein dem normalen Bogenkern zuzuordnender Bereich an, in dem außer den Linien verschiedener Elemente ein Kontinuum zu erkennen ist. (Besonders gut in der näheren Umgebung der CN-Banden sichtbar.) Schließlich gewinnt in der Mitte des Spektrums, dessen Strahlung auch von der Mitte der Bogensäule — also dem Bereich der „überkontrahierten Säule“ — ausgesandt wird, das Kontinuum an Intensität. Vor allem aber erscheinen hier die Linien des Kohlenstoffs, des Kalziums, des Magnesiums, des Aluminiums und des Siliziums gegenüber den beiden äußeren Bereichen ganz wesentlich verstärkt bzw. treten überhaupt erst auf, während Sauerstoff und Stickstofflinien viel weniger in ihrer Schwärzung zunehmen. Da die Elemente Ca, Mg, Al und Si nur aus dem Kathodenmaterial stammen können, in dem sie besonders bei dem von

uns verwandten Naturgraphit als Verunreinigungen enthalten sind, muß die Mitte der Bogensäule — der Existenzbereich der „überkontrahierten Säule“ ganz wesentlich aus Dampf des Kathodenmaterials bestehen.

Noch deutlicher und klarer bringt das in Fig. 5b abgebildete Spektrum diesen Nachweis. Hier war der Bogen vergrößert auf den Spektrographenspalt abgebildet, so daß durch den Spalt wieder wie in Fig. 5a ein Bogenquerschnitt wenige Millimeter über der Kathode erfaßt wurde, aber die Bildbreite der „überkontrahierten Säule“ auf dem Spalt jetzt etwa dessen Länge entsprach. Wie man in Fig. 5b sieht, sind die Linien der in der Kathode enthaltenen Elemente in ihrer Intensität strukturiert. Sie weisen abwechselnd Intensitäts-Maxima und -Minima auf. Die Zahl dieser Maxima — in Fig. 5b sind es sechs — stimmt genau mit der Zahl der „Fäden“ im Bogen überein, wie an Hand von synchron in der gleichen Raumrichtung belichteten Photoaufnahmen festzustellen war. Diese Beobachtung läßt sich bei der kurzen Belichtungszeit der Spektren nur so deuten, daß an den Stellen des Spaltes, die man Intensitätsmaxima zuordnen muß, im Augenblick der Aufnahme „Fäden“ abgebildet waren, während den Intensitätsminima die zwischen den „Fäden“ eingelagerten Dunkelräume entsprachen. Die wenn auch geringe, so doch vorhandene Intensitätsstruktur der Linien des Sauerstoffs, des Stickstoffs und der Cyan-Banden kann auf die Überlagerung der in den einzelnen „Fäden“ verstärkt vorhandenen Kontinuumsintensität zurückgeführt werden. Es soll noch darauf hingewiesen werden, daß die Abbildung des Bogens auf den Spektrographenspalt in Fig. 5b nur für den Wellenlängenbereich zwischen 3000 und 4000 Å scharf war, die Strukturierung der Linien daher um so verwaschener wird, je weiter man sich von diesem Bereich entfernt.

V. Nachweis der Dampfströmung

Der Nachweis, daß es sich bei der „überkontrahierten Säule“ um Dampfstrahlen des Kathodenmaterials handelt, konnte auf zwei verschiedene Arten erbracht werden.

Bringt man eine Lichtbogensäule in ein äußeres Magnetfeld, dessen Feldlinien senkrecht auf der Bogenachse stehen, so werden auf die Ladungsträger Lorentz-Kräfte ausgeübt, durch die die Lichtbogensäule senkrecht zur Strom- und Magnetfeldrichtung gekrümmt wird. Wohnt nun der Bogensäule eine Strömung inne, so setzt diese der Krümmung einen Widerstand entgegen, der um so größer ist, je höher die Bewegungsgröße/cm³ ρ ℑ des strömenden Mediums ist. Die Beobachtung des Widerstandes einer Lichtbogensäule gegen eine Krümmung durch ein äußeres Magnetfeld gestattet also unter Umständen Rückschlüsse auf deren Bewegungszustand zu ziehen. Zur Ausnutzung dieser Möglichkeit sind wir praktisch so vorgegangen (Fig. 6), daß wir die Erregung eines Elektromagneten, dessen rechteckige Polschuhe parallel zur Bogenachse standen, nach Erreichen des Endwertes des Bogenstromes von Null bis zur Sättigung des Eisens heraufgefahren und gleichzeitig den

Bogen mit der Schmalfilmkamera gefilmt haben. Der Bogen brannte bei diesen Untersuchungen nicht gegen die Stirnfläche der stabförmigen Anode, sondern diese war fast horizontal gestellt mit leichter Neigung ihres hinteren Endes nach unten. Hierdurch wurde erreicht, daß der Bogen bis zu relativ starken Krümmungen an der Mantelfläche der Anode ansetzen konnte.

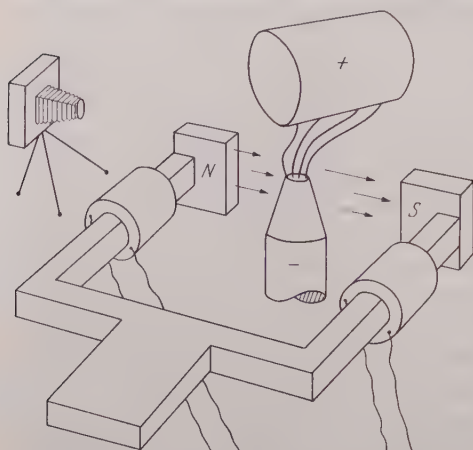


Fig. 6. Anordnung zur magnetischen Ablenkung der Bogensäule

Einige Ausschnittsvergrößerungen aus einem so aufgenommenen Filmstreifen mit verschiedenen charakteristischen Stadien der Säulenkrümmung zeigt die Fig. 7. Der Krümmungsvorgang spielt

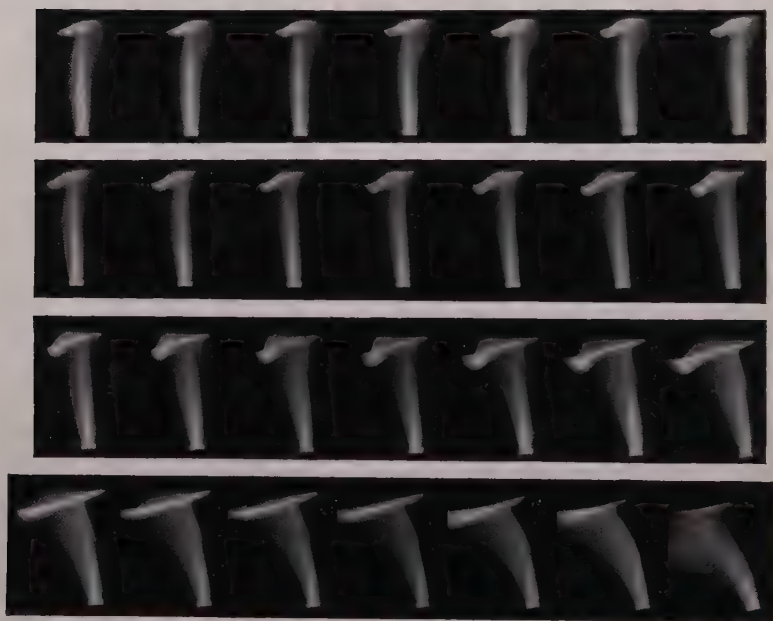


Fig. 7. Ausschnittsvergrößerung aus Filmaufnahmen bei magnetischer Ablenkung der Bogensäule

sich nach den Filmaufnahmen zeitlich folgendermaßen ab. Auf den ersten Bildern der oberen Reihe ist die Magnetfeldstärke noch gleich Null. Der normale Bogenkern steht etwas schief und unsymmetrisch zur „über-

kontrahierten Säule“, so daß diese etwa am linken Kernrand erscheint. Steigt nun das Magnetfeld an, so sieht man auf den nächsten Bildern, wie der Bogenkern langsam nach links herüberwandert, während die „überkontrahierte Säule“ weder ihre Form noch Richtung ändert. Im ersten Bild der dritten Reihe hat sich der Bogenkern schon so weit nach links gekrümmt, daß die „überkontrahierte Säule“ ganz an seinem rechten Rand aber immer noch geradlinig erscheint. Erst auf den nächsten Bildern (3. und 4. Bildreihe) krümmt sich auch die „überkontrahierte Säule“ vor der Anode gerade so weit, daß sie noch eben im Bogenkern bleibt, verschwindet aber dann bei noch stärkerer Krümmung — kurz bevor der Bogen abreißt — auf den letzten Bildern der untersten Reihe im oberen Teil der Bogensäule vollkommen. — Die große „Steifheit“ der „überkontrahierten Säule“ gegen die Krümmung durch ein Magnetfeld gibt zu erkennen, daß in ihr die Strömungsgeschwindigkeiten ganz wesentlich über denen des normalen Bogenkerns liegen. Außerdem kann man aus den Bildern der Fig. 7 wegen des in Anodenrichtung abnehmenden Krümmungswiderstandes einen Geschwindigkeitsabfall in der „überkontrahierten Säule“ in gleicher Richtung folgern was wiederum heißt, daß die Beschleunigung der Dampfstrahlen in Kathoden-nähe erfolgen muß. — Auch durch einen anderen Effekt konnten wir zeigen, daß die Strömungsgeschwindigkeiten in der „überkontrahierten Säule“ ganz erheblich sein müssen. Schossen wir nämlich einen feinen Wasserstrahl quer durch die Bogensäule, so wurde dieser Strahl ohne dabei merklich zu verdampfen dann nach oben gerissen (Fig. 8) (Winkeländerung etwa 10 bis 15°), wenn er die „überkontrahierte Säule“ direkt traf. Diese Richtungsänderung kann nur durch eine Impulsübertragung von der „überkontrahierten Säule“ auf den Wasserstrahl zustande kommen, wobei noch darauf hingewiesen werden soll, daß das Dichteverhältnis zwischen Bogengas und flüssigem Wasser in der Größenordnung von $1:10^5$ liegt.



Fig. 8. Durchschuß eines feinen Wasserstrahles durch die Bogensäule senkrecht zur Achse

VI. Deutungsversuch und Diskussion der Ergebnisse

Nach den oben geschilderten qualitativen Versuchsergebnissen kann man sich folgendes Bild von der Erscheinung der „überkontrahierten Säule“ im Kohlelichtbogen hoher Stromstärke machen: Die „überkontrahierte Säule“ besteht aus Dampfstrahlen des Kathodenmaterials, die wahrscheinlich dadurch erzeugt werden, daß sich oberhalb 500 Amp der Brennfleck des Bogens auf der Kathode in eine mit wachsendem Strom steigende Anzahl von Einzelbrennflecken aufspaltet, wie es ähnlich auch von Hg-Bögen mit flüssiger Hg-Kathode bekannt ist. In diesen Brennflecken wird die Kohle infolge des hohen Leistungsumsatzes sublimieren und der aus den sich bildenden Kratern austretende Dampf wird durch die große Stromdichte unmittelbar vor den Brennflecken hoch erhitzt werden. Aber auch in der Bogensäule wird fast der gesamte Bogenstrom in dem von der Kathode rasch abströmenden Dampf fließen und die Dampfstrahlen auf hoher Temperatur halten. Denn Kohlenstoffdampf hat mit einer Ionisierungsspannung von $E_C = 11,24 \text{ eV}$ bei gleicher Temperatur einen höheren Ionisationsgrad, also auch eine höhere Elektronendichte und damit elektrische Leitfähigkeit als die — besonders vor der Kathode — zwischen die einzelnen Strahlen eingelagerte Luft ($E_O = 13,57 \text{ eV}$, $E_N = 14,51 \text{ eV}$). Gestützt wird diese Annahme durch die erhöhte Emission des Kontinuums aus den Dampf-fäden, wie es aus Fig. 5 a und 5 b ersichtlich ist. Man wird also wegen der heterogenen Gaszusammensetzung eine inhomogene Stromverteilung über den Bogenquerschnitt annehmen müssen, während das Temperaturprofil ziemlich glatt verlaufen dürfte. Allerdings wird auch die Stromverteilung um so gleichmäßiger werden, je mehr man sich der Anode nähert, weil durch Diffusionsvorgänge eine immer stärker werdende Durchmischung von Kohlenstoffdampf und Luft auf dem Wege zur Anode stattfindet, worauf ja auch die in Anodenrichtung zunehmende Strukturverwaschung der Dampfstrahlen hindeutet. Auch das Verhalten der Bogensäule im transversalen Magnetfeld paßt gut in dieses Bild. Folgen die Dampfstrahlen der magnetischen Ablenkung dicht über der Kathode gar nicht und im anodennahen Gebiet nur widerstrebend, so verschwinden sie in der oberen Hälfte der Bogensäule dann ganz (letzte Bildreihe Fig. 7), wenn die Krümmung des normalen Bogenkerns zu stark wird. Zu diesem Zeitpunkt sind die Dampfstrahlen plötzlich in ein viel kälteres Medium als den normalen Bogenkern mit $T > 9750^\circ \text{ K}$ eingebettet, verlieren jetzt wegen des sehr hohen Temperaturgradienten mehr Energie als ihnen durch Joulesche Wärme zugeführt wird, kühlen sich infolgedessen rasch ab, verlieren dadurch ihre hohe Leuchtdichte und Leitfähigkeit, während sich der Bogenstrom andere Wege besserer Leitfähigkeit z.B. innerhalb des stark gekrümmten Bogenkerns sucht.

Die Geschwindigkeiten in den Dampfstrahlen müssen ganz erheblich über den zu maximal 300 m/sec [5] gemessenen Werten der durch eigenmagnetische Kompression im Bereich des Kathodenbrennflecks hervorgerufenen Strömung beim 200 Amp-Bogen liegen, da bei diesem Bogen die Säulenkrümmung bis zum Abreißen bei sehr viel schwächeren Magnetfeldern erfolgt und ein durch die Säule des 200 Amp-Bogens geschossener Wasserstrahl nicht die geringste Ablenkung erfährt.

Ungeklärt sind bisher noch die Fragen nach dem Mechanismus der Dampfbeschleunigung und der Höhe der in den Dampfstrahlen auftretenden Geschwindigkeiten, die nur durch quantitative Messungen zu klären sind. Hierüber soll demnächst an dieser Stelle berichtet werden.

Herrn Professor Dr. F. TREDELENBURG, dem Leiter des Forschungslaboratoriums der Siemens-Schuckert-Werke, Erlangen, in dem die Experimente durchgeführt wurden, bin ich für die Genehmigung, die vorliegende Arbeit als Habilitationsschrift benutzen zu dürfen, zu großem Dank verpflichtet. Fräulein R. DOCKHORN und Herrn A. CORDES danke ich für die Hilfe bei den Untersuchungen.

Literatur

- [1] FINKELNBURG, W.: Hochstromkohlebogen. Berlin: Springer 1948. — [2] KING, L.A.: Nature, Lond. **174**, 1008 (1954). — [3] BURHORN, F.: Private Mitteilung. — [4] GUILLERY, P.: Z. Naturforsch. **10a**, 248 (1955). — [5] WIENECKE, R.: Z. Physik **143**, 128 (1955).

From the Department of Physics, University of British Columbia, Vancouver,
Canada

Mobility of electrons in nondegenerate semiconductors considering electron-electron scattering

By

M. S. SODHA and P. C. EASTMAN

With 1 Figure in the text

(Eingegangen am 11. November 1957)

SPITZER and HÄRM [1] have investigated the velocity distribution of electrons in the presence of a weak electric field in an ionized gas. Introducing the concept of time of relaxation τ' , due to electron-ion and electron-electron scattering, and using the results of SPITZER and HÄRM [1], the authors have obtained an expression for τ' which is applicable to semiconductors with little modification. In this paper the authors have used this expression for τ' to obtain the mobility of electrons in nondegenerate semiconductors, taking into account the scattering by lattice vibrations, electron-ion interactions and electron-electron interactions.

Introduction

Under conditions of thermal equilibrium and when no field is applied the free electrons in an n -type semiconductor may be considered as a gas of particles of effective mass m , moving at random with an average kinetic energy of $(3/2)kT$ and having a Maxwellian distribution of velocities. When an electric field is applied the velocity distribution of electrons is modified by mutual interaction and interaction with impurity ions and lattice phonons. It can be seen that for low electron densities the distribution and hence electron mobility is mainly determined by the scattering of electrons by ions and lattice phonons; electron-electron scattering will have little effect. As the electron density increases the electron-electron scattering plays an increasing part in determining the velocity distribution and hence the electronic mobility.

Recently SPITZER and HÄRM [1] have investigated the velocity distribution of electrons in the presence of an electric field in an ionized gas with a mean ionic charge Z given by

$$Z = \sum_i n_i Z_i^2 / n_e$$

where n_i is the number of ions of charge $Z_i q$ per unit volume, q is the electronic charge and n_e the number of electrons per unit volume. If the ionized gas is electrically neutral

$$n_e = \sum_i n_i Z_i.$$

This analysis leads to an expression for time of relaxation due to electron-ion and electron-electron scattering, which simplifies to an expression, similar to that of CONWELL and WEISSKOPF² for scattering due to electron-ion interactions in semiconductors, when we neglect electron-electron scattering.

To apply this analysis to semiconductors, we should replace the free electronic mass by the effective mass and take account of the dielectric constant of the crystal. In most of semiconductors of interest the ions carry a single electronic charge ($Z_i=1$) and hence

$$Z = \sum_i Z_i^2 n_i / \sum_i Z_i n_i = 1.$$

In this paper the authors have only considered the case $Z=1$ since other values of Z are hardly of any significance in the case of semiconductors.

Times of relaxation

SPITZER and HÄRM [1] have shown that the velocity distribution of an electron gas with ions at rest in presence of a weak electric field \vec{E} is given by

$$f(\vec{x}) = f_0(x) - f_0(x) D(x) \cos \Theta, \quad (1)$$

where

$$\vec{x} = \lambda \vec{v}$$

\vec{v} is the electron velocity,

$\lambda = m/2kT$,

m is electronic mass,

k is Boltzmann's constant,

T is the temperature of gas,

$f_0(x) = \exp(-x^2)$,

Θ is the angle between \vec{E} and \vec{v} ,

$D(x) = A\varphi(x)/Z$,

$\varphi(x) = ZD/A$, is a tabulated [1] function of x and Z ; φ increases as x increases and $\varphi(x) \rightarrow x^4$ when $Z \rightarrow \infty$,

$A = mE/2\pi\lambda q^3 n_e \ln(\hbar/b_0)$,

b_0 is the value of the collision parameter for which an electron is deflected by 90° in an encounter with a positive ion and \hbar is the Debye shielding distance.

If we introduce the concept of relaxation time τ' due to electron-electron and electron-ion scattering we have

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision}} = \frac{f_0(x) D(x)}{\tau'(x)} = \frac{A\varphi(x) f_0(x)}{Z\tau'(x)}, \quad (2)$$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{field}} = \sqrt{\lambda} \cdot (qE/m) \frac{df}{dx}. \quad (3)$$

Using the relation

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{collision}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{field}} = 0 \quad (4)$$

we obtain

$$\frac{1}{\tau'(x)} = -\frac{ZE}{Am} q \lambda^{\frac{1}{2}} \cdot \frac{1}{\varphi(x)} \cdot \frac{1}{f_0(x)} \cdot \frac{df}{dx} = \frac{1}{B'} \frac{x}{\varphi(x)}, \quad (5)$$

where

$$\frac{1}{B'} = \frac{4\pi q^4 Z n_e \lambda^{\frac{3}{2}} \ln(\hbar/b_0)}{m^2} = \frac{4\pi q^4}{m^2} \ln(\hbar/b_0) \lambda^{\frac{3}{2}} \sum n_i Z_i^2.$$

It has been shown by SPITZER and HÄRM [1] that neglecting electron-electron scattering corresponds to $Z \rightarrow \infty$ and $\varphi(x) \rightarrow x^4$. Hence, when electron-electron scattering is neglected we get

$$\frac{1}{\tau'_{\infty}(x)} = \frac{1}{B'} \left(\frac{x}{\varphi(x)} \right)_{Z \rightarrow \infty} = \frac{1}{B' x^3}. \quad (6)$$

CONWELL and WEISSKOPF's [2] expression for time of relaxation due to ion-electron scattering in semiconductors is

$$\frac{1}{\tau'_{\infty}(x)} = \frac{1}{B x^3}, \quad (6A)$$

where

$$B = D^2 m^2 / \lambda^{\frac{3}{2}} \pi N_I q^4 \ln \{1 + D^2 m^2 d^2 x^4 / \lambda^2 q^4\},$$

where d is the minimum distance between electron and ion for the electron to be scattered,

D is the dielectric constant of the crystal,

m the effective mass of electron,

and N_I is the density of impurity ions.

Since $B(x)$ varies very slowly with x it is very common to take B independent of x in mobility investigations.

The similarity between Eqns. (6A) and (6), and between the expressions for B and B' and the analogy between a semiconductor and ionized gas developed in the introduction suggest that for semiconductors we have in general (when electron-electron scattering is not neglected)

$$\frac{1}{\tau'(x)} = \frac{1}{B} \cdot \frac{x}{\varphi(x)}. \quad (7)$$

Under the assumption that equipartition is valid for lattice phonons, with which the electron interacts SHOCKLEY [3] has shown that the relaxation time τ_L is given by

$$\frac{1}{\tau_L} = \frac{x}{l}, \quad (8)$$

where l is constant at a given temperature.

The effective time of relaxation τ is given by

$$\tau = \left\{ \frac{1}{\tau'} + \frac{1}{\tau_L} \right\}^{-1} = \frac{l \varphi(x)/x}{\varphi(x) + a^2}, \quad (9)$$

where $a^2 = l/B$, to be interpreted later.

Mobility considerations

Assuming that the surfaces of constant energy in the Brillouin zone are spherical CONWELL [4] has shown that mobility μ is related to time of relaxation τ by

$$\mu = \frac{q}{3m} \left\langle \frac{1}{x^2} \frac{d}{dx} (x^3 \tau) \right\rangle. \quad (10)$$

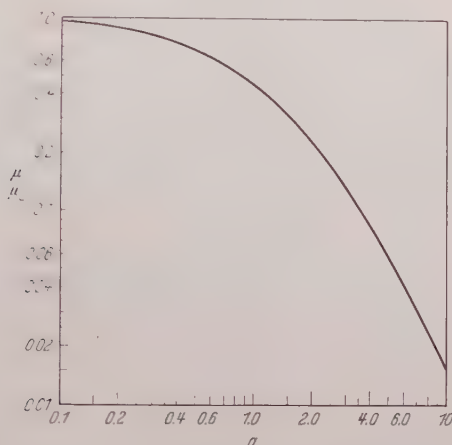


Fig. 1. Variations of μ/μ_L with a

For nondegenerate semiconductors the velocity distribution of electrons is given by

$$N(x) dx = A x^2 \exp(-x^2) dx \quad (11)$$

and Eqn. (10) can be shown to reduce to

$$\mu = \frac{q}{m} \frac{\langle x^2 \tau \rangle}{\langle x^2 \rangle}. \quad (10A)$$

Using Eqns. (10) and (11) with the appropriate equation for time of relaxation we get

$$\mu_L = \frac{4ql}{3m\sqrt{\pi}}, \quad (11A)$$

$$\mu_{L,\infty} = \frac{8qB}{m\sqrt{\pi}}, \quad (11B)$$

$$\mu = \frac{ql}{m} \frac{\int_0^\infty [x \varphi(x) / \{\varphi(x) + a^2\}] \exp(-x^2) dx}{\int_0^\infty x^4 \exp(-x^2) dx} = \mu_L F(a), \quad (11C)$$

where

$$\mu/\mu_L = F(a) = 2 \int_0^{\infty} [x \varphi(x) / \{\varphi(x) + a^2\}] \exp(-x^2) dx.$$

μ_L is the mobility due to lattice scattering,

μ_I is the mobility due to ion-electron and electron-electron scattering,

μ is the net mobility

and suffix ∞ refers to the case when electron-electron scattering is negligible.

From Eqns. (11A) and (11B) a^2 may be interpreted as

$$a^2 = \frac{l}{B} = \frac{6\mu_L}{\mu_{I,\infty}}.$$

The variation of μ/μ_L with a is illustrated in Fig. 1.

The authors are grateful to DEAN G. M. SHRUM for kind encouragement and to Prof. R. E. BURGESS for valuable suggestions and helpful discussion. Thanks are also due to National Research Council of Canada for award of a post doctorate fellowship (M. S. S.) and a studentship (P. C. E.) to authors.

References

[1] SPITZER jr., L., and R. HÄRM: Phys. Rev. **89**, 977 (1953). — [2] CONWELL, E., and V. F. WEISSKOPF: Phys. Rev. **77**, 388 (1950). — [3] SHOCKLEY, W.: Electrons and Holes in Semiconductors Chap. 17. New York: D. Van Nostrand Co., Inc. 1950. — [4] CONWELL, E.: Phys. Rev. **88**, 1379 (1952).

Erratum

Während der Drucklegung stellte sich ein Fehler im Manuskript heraus. In der Gl. (11 C) muß $F(a)$ ersetzt werden durch:

$$2 \int_0^{\infty} \frac{x^3 \varphi(x)}{\varphi(x) + a^2} e^{-x^2} dx.$$

Die Fig. 1 muß dementsprechend abgeändert werden.

Die Verfasser

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Heidelberg

Über die multiple Mesonenproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen und bei der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung

Von

MARTIN KRETZSCHMAR*

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 16. Oktober 1957)

Es wird untersucht, welche Aussagen FERMIS statistische Theorie über die genannten Prozesse macht, wenn man den willkürlichen Parameter so festlegt, daß die mittlere Energie der bei der Antiprotonvernichtung erzeugten π -Mesonen richtig herauskommt. Man findet, daß die statistische Theorie die Antiprotonvernichtung gut zu beschreiben vermag und daß auch die Aussagen über die Mesonenerzeugung bei Nukleon-Nukleon-Stößen in sehr viel besserer Übereinstimmung mit dem Experiment stehen als es nach FERMIS ursprünglicher Rechnung der Fall war. Die mittlere Energie der π -Mesonen weicht jetzt höchstens noch um einen Faktor 1,5 von den experimentellen Werten ab. Davon abgesehen wird ihre Abhängigkeit von der Primärenergie gut wiedergegeben.

§ 1. Einleitung

In der letzten Zeit wurde eine Anzahl von Mesonenschauern, die durch sehr energiereiche Nukleonen der Höhenstrahlung in Photoplatten ausgelöst worden waren, genauer untersucht¹⁻¹⁰. Dabei wurden insbesondere Angaben über die Form des Energiespektrums** und die mittlere Energie** der erzeugten Mesonen in Abhängigkeit von der

* Jetzt am Institut für Theoretische Physik der Universität Göttingen.

** Bezogen auf das Schwerpunktsystem.

¹ HOPPER, V. D., S. BISWAS u. J. DARBY: Phys. Rev. **84**, 457 (1951).

² TEUCHER, M.: Naturwiss. **39**, 68 (1952). — GOTTSTEIN, K., u. M. TEUCHER: Z. Naturforsch. **8a**, 120 (1953).

³ LORD, J. J., J. FAIBERG u. M. SCHEIN: Phys. Rev. **80**, 970 (1950). — GLASSER, R. G., D. M. HASKIN, M. SCHEIN u. J. J. LORD: Phys. Rev. **99**, 1555 (1955). — SCHEIN, M., R. G. GLASSER u. D. M. HASKIN: Nuovo Cim. **2**, 647 (1955).

⁴ LINDERN, L. v.: Z. Naturforsch. **11a**, 340 (1956).

⁵ LOHRMANN, E.: Nuovo Cim. **3**, 822 (1956). — Z. Naturforsch. **11a**, 561 (1956).

⁶ HÄNNI, F. D., C. LANG, M. TEUCHER, H. WINZELER u. E. LOHRMANN: Nuovo Cim. **4**, 1473 (1956).

⁷ DEBENEDETTI, A., C. M. GARELLI, L. TALLONE u. M. VIGONE: Nuovo Cim. **4**, 1142 (1956).

⁸ LOHRMANN, E.: Nuovo Cim. **5**, 1074 (1957).

⁹ FOWLER, P. H.: Rochester-Konferenz 1957.

¹⁰ KANEKO, S., O. KUSUMOTO u. M. MATSUMOTO: Preprint.

Primärenergie des stoßenden Nukleons gewonnen. Diese Messungen sollten Aussagen über die Gültigkeit der derzeitigen Theorien der Mesonenvielfacherzeugung bei Nukleon-Nukleon-Stößen ermöglichen¹¹⁻¹⁵. Ein solcher Vergleich zwischen Theorie und Experiment stößt jedoch auf Schwierigkeiten, weil die Theorien noch Parameter enthalten, welche in gewissen Grenzen willkürlich sind und dadurch Unsicherheiten in die theoretischen Vorhersagen hineinbringen.

In besonderem Maße trifft dies auf FERMIs thermodynamisch-statistische Theorie^{11, 12} zu, und mit dieser werden wir uns im folgenden hauptsächlich beschäftigen*. Der willkürliche Parameter tritt hier als der Radius R_0 des unkontrahierten Reaktionsvolumens auf. Er wurde von FERMI, weil damals (1950) noch fast kein experimentelles Material vorlag, größenordnungsmäßig auf $1,4 \cdot 10^{-13}$ cm (Compton-Wellenlänge des π -Mesons) abgeschätzt. FERMI wies ausdrücklich auf die darin liegende Unsicherheit hin. Inzwischen hat sich herausgestellt, daß diese Abschätzung von R_0 viel zu große Werte für die mittlere Energie der erzeugten Mesonen ergibt, so daß eine anderweitige Bestimmung von R_0 notwendig ist.

Das wird in der vorliegenden Arbeit versucht auf Grund der Überlegung, daß die Theorie sowohl die Mesonenvielfacherzeugung bei der Antiprotonzerstrahlung als auch die bei Nukleon-Nukleon-Stößen mit demselben Wert des Parameters R_0 richtig beschreiben sollte, falls die Hypothesen, auf denen FERMI¹¹ aufbaut, wirklich zutreffen. Um den passenden Wert von R_0 zu finden, kann man verlangen, daß die Theorie wenigstens den experimentell bestimmten Wert für die mittlere Energie der π -Mesonen bei der Antiprotonvernichtung (346 MeV einschließlich Ruhmasse)¹⁶ richtig wiedergeben soll. Man kommt so zu $R_0 = 3,63 \times 10^{-13}$ cm. Berechnet man mit dieser Wahl des Parameters für den

* Auch in HEISENBERGS Theorie¹³ gibt es einen willkürlichen Parameter, die Maximalenergie $p_{0 \max}$. Diese könnte im Prinzip noch in gewissen Grenzen um den von HEISENBERG angegebenen Wert variieren. (Im Anhang ist $p_{0 \max}$ mit $E_{\pi 0}$ bezeichnet.)

¹¹ FERMI, E.: Progr. Theor. Phys. **5**, 570 (1950).

¹² FERMI, E.: Phys. Rev. **81**, 683 (1951).

¹³ HEISENBERG, W.: Z. Physik **133**, 65 (1952).

¹⁴ HEISENBERG, W.: Vorträge über kosmische Strahlung. Berlin-Göttingen-Heidelberg 1953. Vgl. auch die dort angegebene frühere Literatur.

¹⁵ BELENKI, S. S., u. L. D. LANDAU: Uspechi fiz. Nauk **56**, 309 (1955). Übersetzt in Fortschr. Phys. **3**, 536 (1955) und Nuovo Cim. Suppl. **3**, 15 (1956). Vgl. auch die in diesen Arbeiten angegebene Literatur.

¹⁶ Antiproton Collaboration Experiment by BARKAS, W. H., R. W. BIRGE, W. W. CHUPP, A. G. EKSPONG, G. GOLDBABER, S. GOLDBABER, H. H. HECKMAN, D. H. PERKINS, J. SANDWEISS, E. SEGRÉ, F. M. SMITH, D. H. STORK, L. VAN ROSSUM, E. AMALDI, G. BARONI, C. CASTAGNOLI, C. FRANZINETTI u. A. MANFREDINI: Phys. Rev. **105**, 1037 (1957).

Prozeß der Antiprotonvernichtung die Form des Energiespektrums der π -Mesonen, die Wahrscheinlichkeit für die Produktion von K -Mesonen und die mittlere Energie der K -Mesonen, so kommt man zu guter Übereinstimmung mit dem Experiment (vgl. Tabelle 1 und Fig. 1). Was die Mesonenvielfachproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen anbetrifft, so bewirkt die oben getroffene Wahl von R_0 im Vergleich mit FERMI's ursprünglicher Rechnung eine Verschiebung des Energiespektrums der Mesonen zu niedrigeren Energien hin, so daß die theoretischen Werte für die mittleren Mesonenenergien jetzt wesentlich näher an den experimentell gefundenen liegen als bei FERMI (vgl. Fig. 2). In gewissem Maße hat auch die Berücksichtigung der K -Mesonenproduktion zu dieser Verschiebung beigetragen. Bei niedrigen Primärenergien dürfen auch die Massen der Mesonen nicht mehr vernachlässigt werden. Trotz allem scheinen aber die theoretischen Werte für die mittlere Mesonenenergie immer noch etwas größer zu sein als die experimentell bestimmten Werte, jedoch ist angesichts der sehr erheblichen experimentellen Unsicherheiten eine quantitative Abschätzung der Abweichungen nur schwer möglich.

§ 2. Durchführung der Rechnung

a) Allgemeines

Ehe wir auf die Details der Rechnung eingehen, sei kurz an die wesentlichsten Annahmen FERMI's¹¹ erinnert:

1. Wenn zwei Teilchen, zwischen denen eine starke Wechselwirkung besteht (Nukleonen, Antinukleonen, Mesonen, ...), miteinander zusammenstoßen, wird die gesamte von den stoßenden Teilchen mitgebrachte Energie E (auf den gemeinsamen Schwerpunkt bezogen) innerhalb eines kleinen Volumens Ω freigesetzt und verteilt sich gleichmäßig über dieses Volumen. Indem vorhandene Teilchen vernichtet und neue Teilchen erzeugt werden, bildet sich schließlich in Ω ein Gleichgewichtszustand heraus, der mit Hilfe der statistischen Thermodynamik berechnet und durch Angabe einer Temperatur charakterisiert werden kann, ohne daß dazu eine genauere Kenntnis der auftretenden Wechselwirkungen erforderlich ist. Bezeichnet $\varepsilon(T)$ die Energiedichte in Ω bei der Temperatur T , so gilt

$$E = \varepsilon(T) \cdot \Omega. \quad (1)$$

$\varepsilon(T)$ setzt sich additiv aus den Beiträgen der einzelnen im Gleichgewichtszustand in Ω vorhandenen Teilchensorten zusammen.

2. Der im Experiment beobachtete Endzustand entsteht, indem das Gleichgewicht in Ω einfriert und alle im Gleichgewichtszustand

vorhandenen Teilchen ohne weitere Wechselwirkungen aus Ω aus-treten*.

3. Die Größe des Reaktionsvolumens Ω ist gleich dem Volumen, das die anfänglich vorhandenen Teilchen im Augenblick des Zusammenstoßes einnehmen (im Schwerpunktsystem betrachtet)**. Hierbei ist selbstverständlich die Lorentz-Kontraktion der Volumina der Stoßpartner zu berücksichtigen. Im Falle eines Nukleon-Nukleon- oder eines Nukleon-Antinukleon-Stoßes macht man den Ansatz

$$\Omega = \frac{2 \cdot M c^2}{E} \cdot \Omega_0 \quad \text{mit} \quad \Omega_0 = \frac{4\pi}{3} \cdot R_0^3 \quad (2)$$

(E = gesamte Energie beider stoßender Teilchen einschließlich der Ruhmassen, bezogen auf das Schwerpunktsystem; M = Nukleonenmasse c = Lichtgeschwindigkeit). Ω ist nur über den Lorentz-Kontraktionsfaktor $2Mc^2/E$ energieabhängig***. R_0 ist der in die Theorie eingehende willkürliche Parameter. Nach der obigen Vorstellung sollte er, grob gesagt, etwa der Reichweite der Wechselwirkung zwischen den ankommenden Teilchen entsprechen, aber daraus kann man natürlich höchstens seine Größenordnung entnehmen.

Hat man sich einmal für einen bestimmten Wert des Parameters R_0 entschieden, so erhält man die Temperatur T des Gleichgewichtszustandes aus der Gl. (1). Aus T bestimmt man dann die mittlere Energie und das Energiespektrum der emittierten Teilchen. Für eine Teilchensorte mit der Masse m kann man aus der relativistischen Mechanik

* Diese Annahme widerspricht zusammen mit 1. insofern der Erfahrung, als danach Nukleon-Nukleon-Stöße fast völlig inelastisch wären und beinahe die gesamte anfänglich vorhandene kinetische Energie der Nukleonen zur Produktion neuer Teilchen verbraucht werden müßte. Tatsächlich beobachtet man häufig Ereignisse, bei denen nur 10 bis 30% der verfügbaren Energie zur Mesonenproduktion aufgewandt werden. Außerdem würde man mit dieser Annahme viel zu große Produktionsraten für Antinukleonen und schwere Mesonen erhalten. Sofern man den Punkt 1. akzeptieren will, erscheint es daher sinnvoller zu sagen, daß aus dem Gleichgewichtszustand zunächst vorwiegend leichte Teilchen mit einer diesem Zustand entsprechenden Energieverteilung abdampfen, dann aber der Rest des Systems unter Aussendung energiereicher Nukleonen auf einem anderen Wege zerfällt. (Vgl. hierzu auch §3, wo die Abänderung der Annahme 1. diskutiert wird.) Diese Überlegungen lassen es auch plausibel erscheinen, daß die Fermische Theorie eher richtige Aussagen über die mittlere Energie der erzeugten Mesonen als über deren Anzahl (vgl. FERMI¹¹) liefern wird.

** Man vgl. hierzu die Begründung und die Bemerkungen von FERMI^{11, 12}.

*** Verschiedentlich hat man versucht, diese Energieabhängigkeit von Ω durch eine andere zu ersetzen. Man vgl. etwa I. POMERANTSCHUK¹⁷ und K. ONO und K. YOKOI¹⁸.

¹⁷ POMERANTSCHUK, I.: Doklady Akad. Nauk SSSR. **78**, 889 (1951). Ins Deutsche übersetzt in den Abhandlungen aus der Sowjetischen Physik, Folge IV, S. 82, Berlin 1954.

¹⁸ ONO, K., u. K. YOKOI: Progr. Theor. Phys. **13**, 101 (1955).

für Energiedichte $\varepsilon(T)$ und Teilchendichte $n(T)$ bei der Temperatur T folgende Ausdrücke herleiten^{*}:

$$\varepsilon(T) = \frac{g}{2\pi^2} \cdot T^4 \cdot \Phi\left(\frac{m}{T}\right), \quad (3a); \quad n(T) = \frac{g}{2\pi^2} \cdot T^3 \cdot F\left(\frac{m}{T}\right), \quad (3b).$$

In diesen Formeln ist $m_\pi = \hbar = c = 1$ (m_π = Masse des π -Mesons, \hbar -- Plancksche Konstante) gesetzt und die Temperatur wird in energetischen Einheiten gemessen (d.h. in $m_\pi c^2$). g ist ein statistisches Gewicht, welches z.B. für das Pionengas den Wert $g_\pi = 3$ besitzt (3 Ladungszustände!). Die Funktionen $\Phi(x)$ und $F(x)$ lassen sich mit Hilfe der modifizierten Bessel-Funktionen $K_1(x)$ und $K_2(x)$ ausdrücken:

$$\Phi(x) = x^2 \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{3K_2(nx) + n \cdot x \cdot K_1(nx)}{n^2} \quad (4)$$

$$F(x) = x^2 \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{K_2(nx)}{n}. \quad (5)$$

Die Formeln (4) und (5) gelten für ein Bosonengas. Für ein Fermionengas sind die Reihen mit alternierendem Vorzeichen aufzusummieren.

b) Vernichtung eines langsamen Nukleon-Antinukleon-Paares

Die bei diesem Prozeß umgesetzte Energie beträgt $E = 2 \cdot M c^2 = 13,46 m_\pi c^2$. Neben π -Mesonen werden entweder gar keine oder aber zwei K -Mesonen erzeugt. Denn weil im Endzustand keine schweren Teilchen mehr vorhanden sind, aber auch die Strangeness erhalten bleiben muß, ist nur die Produktion einer geraden Anzahl von K -Mesonen möglich, andererseits reicht die verfügbare Energie nicht für vier oder mehr K -Mesonen aus. Berücksichtigt man diese Verhältnisse, so ergeben sich für das K -Mesonengas bei sehr niedrigen Temperaturen Abweichungen von den Formeln (3) bis (5), denn nur der Anteil der Zustandssumme für das K -Mesonengas trägt etwas bei, der der Gesamtstrangeness 0 entspricht. Nimmt man an, daß die K -Mesonen positiver bzw. negativer Strangeness je ein Isotopenspin-Dublett bilden, und beschränkt man sich auf die ersten Glieder der Zustandssumme Z — was für unsern Zweck eine gute Näherung ist — so erhält man

$$Z = 1 + \left[2 \cdot \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \cdot 4\pi \cdot \int_0^\infty e^{-\frac{\sqrt{m_K^2 + p^2}}{T}} \cdot p^2 dp \right]^2 + \quad (6)$$

+ Beiträge der Glieder mit 4, 6, 8, ... Teilchen.

In dieser und allen folgenden Formeln werden die Energie und die Temperatur in Einheiten $m_\pi c^2$ gemessen und $\hbar = c = 1$ gesetzt. Nach

^{*} Vgl. S. S. BELENKI und L. D. LANDAU¹⁵ oder auch S. CHANDRASEKHAR: *An Introduction to the Study of Stellar Structure*. 1950.

der Ausführung der Integration ist

$$Z = 1 + \left[\frac{\Omega \cdot m_K^2 \cdot T}{\pi^2} \cdot K_2 \left(\frac{m_K}{T} \right) \right]^2 + \dots \quad (7)$$

Für die Gesamtzahl der K -Mesonen ergibt sich

$$N_K = \frac{2}{Z} \cdot \left[\frac{\Omega \cdot m_K^2 \cdot T}{\pi^2} \cdot K_2 \left(\frac{m_K}{T} \right) \right]^2 + \dots \quad (8)$$

Setzt man [vgl. Formel (3)]

$$g_K = \frac{N_K}{\frac{\Omega}{2\pi^2} \cdot T^3 \cdot F \left(\frac{m_K}{T} \right)} \quad (9)$$

anstelle von g in die Formel (3a) ein, so kann man diese auch für das K -Mesonengas benutzen. Aus (1), (2), (3) und (9) erhält man so zur Beschreibung der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung die Gleichung

$$E = \frac{\Omega_0}{2\pi^2} \cdot T^4 \cdot \left(g_\pi \cdot \Phi \left(\frac{m_\pi}{T} \right) + g_K \cdot \Phi \left(\frac{m_K}{T} \right) \right). \quad (10)$$

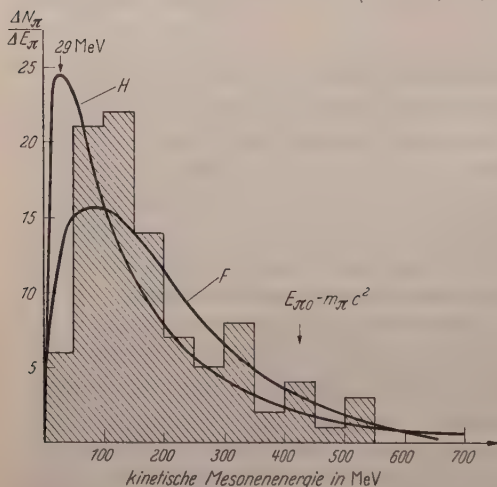


Fig. 1. Das Energiespektrum der bei der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung erzeugten π -Mesonen. Die experimentelle Kurve stellt das Resultat des Antiproton Collaboration Experiments (W.H. BARKAS et al.¹⁶) dar, F ist die theoretische Vorhersage von FERMIS statistischer Theorie (§2b), H ein Spektrum des Heisenbergschen Typs. (Der zugehörige Parameterwert ist $\alpha^{-1} = \frac{E_{\pi 0}}{m_\pi c^2} = 4,5$. Vgl. den Anhang.)

Die π -Mesonen, die bei der Vernichtung eines langsamen Antiprotons entstehen, besitzen im Mittel eine Energie (einschließlich der Ruhmasse) von $\bar{E}_\pi = 346 \pm 20$ Mev¹⁶. Wenn wir verlangen, daß die Theorie diesen Wert richtig wiedergibt, so bestimmen wir durch diese Forderung die Temperatur des Gleichgewichtszustandes, der sich nach FERMIS Annahmen nach der Vernichtung des Antiprotons einstellen sollte. Aus dieser Temperatur und der bekannten Gesamtenergie $E = 2 \cdot M c^2$ läßt sich mit Hilfe von Gl. (10) das Reaktionsvolumen Ω_0 und damit der willkürliche Parameter R_0 bestimmen. Alle andern beobachtbaren Größen

sollten sich nun richtig berechnen lassen. Dies sind die mittlere Anzahl der erzeugten π -Mesonen (\bar{N}_π), das Energiespektrum der π -Mesonen (vgl. Fig. 1), die mittlere Energie der K -Mesonen (\bar{E}_K), die Wahrschein-

lichkeit für die Produktion eines K -Mesonenpaares (W_K) und insbesondere eines Paares mit mindestens einem geladenen K -Meson ($W_{K\text{ gel}}$). Die Ergebnisse der Rechnung sind in der folgenden Tabelle den experimentell beobachteten Werten¹⁶ gegenübergestellt:

Tabelle 1

$1/T$	T	\bar{E}_π (MeV)	\bar{N}_π	\bar{E}_K (MeV)	W_K	$W_{K\text{ gel}}$	$\frac{\Omega_0}{3} \cdot \left(\frac{\hbar}{m_\pi c}\right)^3$	R_0 (in $\frac{\hbar}{m_\pi c}$)
1,4	0,715	355,0	4,98	678,0	8,1 %	6,1 %	14,65	2,45
1,45	0,690	346,6	5,12	667,0	7,6 %	5,7 %	17,18	2,59
1,5	0,667	338,8	5,28	660,5	6,6 %	4,95 %	20,14	2,72
experimentell		346 ± 20	$5,3 \pm 0,4$	645 ± 60	—	$5/85 = 5,9\% \star$	—	—

Diese Zahlen stehen in recht guter Übereinstimmung mit dem Experiment. In ¹⁶ wurden mit Hilfe einer andern Rechenmethode ähnliche Werte für Ω_0 erhalten^{★★}. Für die folgenden Betrachtungen werden wir den Wert $R_0 = 2,59 \frac{\hbar}{m_\pi c} = 3,63 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ als den „richtigen“ Wert des willkürlichen Parameters R_0 ansehen.

Fig. 1 zeigt, daß auch das nach der statistischen Theorie berechnete Energiespektrum gut mit dem tatsächlich beobachteten übereinstimmt. Über die Berechnung der Vergleichskurve nach HEISENBERG gibt der Anhang nähere Auskunft.

c) Mesonenproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen

Wenn sich im Volumen Ω nach dem Zusammenstoß der Nukleonen die Gleichgewichtstemperatur T einstellt, so besitzt ein einzelnes Nukleon bei dieser Temperatur im Mittel die Energie $\frac{\varepsilon_N(T)}{n_N(T)}$. Da die ursprünglich vorhandenen Nukleonen bei der Reaktion erhalten bleiben müssen, steht für die Produktion von neuen Teilchen der Energiebetrag

$$E - 2 \cdot \frac{\varepsilon_N(T)}{n_N(T)} \quad (11)$$

^{*} Aus ¹⁶ würde sich 8,5% ergeben. Der obige Wert wurde auf Grund einer umfangreicheren Statistik ermittelt und auf der Rochester-Konferenz 1957 durch G. EKSPONG mitgeteilt.

^{★★} In der genannten Arbeit wurden die relativen Wahrscheinlichkeiten für die Produktion von N_π Pionen und N_K K -Mesonen nach den Methoden von J. V. LEPORE und R. STUART [Phys. Rev. **94**, 1724 (1954)] und G. E. A. FIALHO [Phys. Rev. **105**, 328 (1957)] berechnet. Es ergab sich für $\Omega_0 / \frac{4\pi}{3} \cdot \left(\frac{\hbar}{m_\pi c}\right)^3 = 15$ der Wert $\bar{N}_\pi = 5,0$ und $W_K = 12,3\%$. Vom Autor dieser Arbeit wurden unabhängig davon analoge Rechnungen durchgeführt und ähnliche Ergebnisse erhalten.

zur Verfügung. Wenn, wie FERMI in Punkt 1 und 2 angenommen hat, wirklich die gesamte Energie (11) zur Produktion neuer Teilchen verbraucht wird, dann folgt mit Hilfe von (2)

$$E - 2 \cdot \frac{\varepsilon_N(T)}{n_N(T)} = (\varepsilon_\pi(T) + \varepsilon_K(T)) \cdot \frac{2 \cdot M c^2}{E} \cdot \Omega_0. \quad (12)$$

Eigentlich müßte man auf der rechten Seite dieser Gleichung noch Beiträge für die Produktion von schweren Teilchen, also Nukleonen, Antinukleonen, Hyperonen und Antihyperonen, hinzufügen, aber dann würde sich nach FERMIS Annahme 2 ergeben, daß bei sehr energiereichen Nukleon-Nukleon-Stößen neben wenigen Mesonen im wesentlichen schwere Teilchen und ihre Antiteilchen produziert würden, denn den 7 Arten von Mesonen stehen nach dem Schema von GELL-MANN und NISHIJIMA bei Berücksichtigung des Spins 32 Arten schwerer Teilchen und Antiteilchen gegenüber. Experimentell beobachtet man dagegen unter den Reaktionsprodukten nur verhältnismäßig selten ein Antiproton oder ein Antihyperon. Im Hinblick auf die Experimente ist der Ansatz (12) also gerechtfertigt. In (12) ist bei der Energiedichte des K -Mesonengases $\varepsilon_K(T)$ der statistische Faktor $g_K = 4$ [vgl. Gl. (3)] zu wählen. Denn bei Nukleon-Nukleon-Stößen können aus den ursprünglich vorhandenen Nukleonen ein oder auch zwei Hyperonen entstehen, und dadurch besteht hier die Möglichkeit, unter Erhaltung der Strangeness auch ungerade Anzahlen von K -Mesonen zu produzieren.

Wenn ein Nukleon beim Stoß in ein Hyperon verwandelt wird, so wäre eigentlich auf der linken Seite von (12) ein etwas größerer Energiebetrag von der Gesamtenergie E abziehen, aber dies würde auf die berechneten mittleren Mesonenenergien außer bei ganz niedrigen Primärenergien keinen merklichen Einfluß haben. Auf eine entsprechende Berücksichtigung dieses Umstandes in Gl. (12) kann daher verzichtet werden.

Wenn man in (12) die kinetische Energie der beiden Nukleonen vernachlässigt, also $\frac{\varepsilon_N(T)}{n_N(T)} = M c^2$ setzt, ferner die K -Mesonenproduktion beiseite läßt ($\varepsilon_K(T) = 0$) und in dem Ausdruck für $\varepsilon_\pi(T)$ die Masse des π -Mesons vernachlässigt ($\Phi\left(\frac{m_\pi c^2}{T}\right) = \Phi(0) = 6,49$), und wenn man schließlich noch wie bei FERMI den Parameter $R_0 = 1,4 \cdot 10^{-13}$ cm (Compton-Wellenlänge des π -Mesons) setzt, dann erhält man aus (12) für die mittlere Energie der erzeugten π -Mesonen (gemessen in BeV)

$$\bar{E}_\pi = 0,358 \cdot \sqrt[4]{w(w-2)} \quad \text{mit} \quad w = \frac{E}{M c^2}. \quad (13)$$

Diese Formel enthält die Aussagen von FERMIS ursprünglicher Rechnung^{11, *}, wenn man in dieser auf die Berücksichtigung von Drehimpulseffekten^{**} verzichtet. FERMIS Drehimpulsfaktor eingeschlossen würde sich ergeben

$$\bar{E}_\pi = 0,703 \cdot \sqrt[4]{w(w-2)} \text{ BeV.} \quad (14)$$

Wenn man in (13) die Produktion von K -Mesonen einschließt (aber unter Vernachlässigung der K -Mesonenmasse) und wenn man für R_0

* Es ist $\bar{E}_\pi = \frac{E - 2 \cdot M c^2}{N_\pi}$, wobei N_π durch FERMIS Formel (32)¹¹ gegeben ist. In dieser ist jedoch zuvor ein Fehler zu korrigieren. Sie lautet richtig

$$N_\pi = 1,34 \cdot \sqrt[4]{(w-2)^3 \cdot w^{-1}} \quad \text{oder} \quad N_\pi = 2,63 \cdot \sqrt[4]{(w-2)^3 \cdot w^{-1}},$$

je nachdem, ob der den Drehimpuls berücksichtigende Faktor 0,51 hinzugefügt wird oder nicht. Bei der Herleitung der Formel ist nämlich der Faktor E^2 in FERMIS Formel (27) nicht durch $(E - 2 \cdot M c^2)^2$, sondern durch $E \cdot (E - 2 \cdot M c^2)$ zu ersetzen (E entspricht dem W in FERMIS Bezeichnung). Dies sieht man sofort ein, wenn man sich die Herkunft des Faktors E^2 in (27) überlegt.

** FERMIS hat in ¹¹ die statistische Theorie der Nukleon-Nukleon-Stöße mit dem von rein theoretischen Gesichtspunkten her gewählten Reaktionsvolumen

$\Omega_0 = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{\hbar}{m_\pi c} \right)^3$ zunächst einmal ohne Berücksichtigung der Drehimpulserhaltung durchgeführt, dann aber gezeigt, daß auf diese Weise die Anzahl der erzeugten Mesonen zu hoch und ihre mittlere Energie zu klein herauskommen sollte. Dieses Resultat ist qualitativ sehr plausibel. Bei der Abschätzung der Größe des Effekts erhielt FERMI einen von der Primärenergie unabhängigen Korrekturfaktor 1,96 für die mittlere Mesonenenergie bzw. 0,51 für die Mesonenanzahl (vgl. auch die Rechnung in ¹²). Da in dem numerischen Faktor auf der rechten Seite von (14) auch eine negative Potenz des Reaktionsvolumens enthalten ist, kann man die Drehimpulskorrektur in das Reaktionsvolumen absorbieren und auf diese Weise mit einem kleineren Reaktionsvolumen unter gänzlicher Vernachlässigung der Drehimpulseffekte zu dem gleichen Wert für die mittlere Energie gelangen, welchen FERMI in der oben geschilderten Weise erhielt. Das ist auch der Grund dafür, daß in den hier vorgelegten Rechnungen von einer Berücksichtigung der Drehimpulserhaltung ganz abgesehen wird. Denn hier wird das Reaktionsvolumen von vornherein so bestimmt, daß die mittlere Mesonenenergie bei der Antiprotonvernichtung richtig herauskommt. Die Wirkung etwaiger Drehimpulseffekte ist also, soweit sie sich durch eine bloße Temperaturerhöhung erfassen läßt, bei der Antiprotonvernichtung schon automatisch mit eingeschlossen. Das berechnete Reaktionsvolumen ist daher sozusagen ein „effektives“ Volumen. Falls die Drehimpulseffekte bei der Antiprotonvernichtung und die bei Nukleon-Nukleon-Stößen von unterschiedlicher Größe sind, muß man auch beide Prozesse mit verschiedenen „effektiven“ Volumina behandeln. Wegen der bei Nukleon-Nukleon-Stößen auftretenden hohen Drehimpulse sind in diesem Fall größere Drehimpulseffekte, d.h. kleinere effektive Volumina als bei der Antiprotonvernichtung zu erwarten. Die in Fig. 2 eingetragenen Mesonenenergien müssen daher möglicherweise noch etwas nach oben korrigiert werden. Allerdings ist sehr schwer abzuschätzen, welcher Anteil der Drehimpulskorrektur von der Rechnung schon erfaßt wird. Daher wurden beide Prozesse mit demselben effektiven Volumen berechnet. Auf der anderen Seite läßt ein Vergleich mit den experimentellen Punkten größere Korrekturen nach oben untunlich erscheinen.

den in § 2b gefundenen Wert $R_0 = 3,63 \cdot 10^{-13}$ cm einsetzt, gelangt man zu

$$\bar{E}_\pi = \bar{E}_K = 0,144 \cdot \sqrt[4]{w(w-2)}. \quad (15)$$

Die mit $R_0 = 3,63 \cdot 10^{-13}$ cm aus (12) berechneten mittleren Energien sind bei niedrigen Primärenergien etwas größer als die von (15) gelieferten Werte, sie gehen aber mit wachsender Primärenergie in die durch (15) gegebenen Werte über.

Die Resultate der numerischen Auswertung der Gl. (12) sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Die Rechnung wurde für zwei verschiedene Werte des Parameters R_0 , nämlich für $R_0 = 2,59 \hbar/m_\pi c = 3,63 \cdot 10^{-13}$ cm und für $R_0 = 2,72 \cdot \hbar/m_\pi c = 3,81 \cdot 10^{-13}$ cm (vgl. auch Tabelle 1) durchgeführt, aber die Resultate beider Rechnungen unterscheiden sich nur geringfügig.

Tabelle 2a. Zusammenhang zwischen Temperatur und Primärenergie (E_{prim})

T^{-1}	T	$R_0 = 2,59 \cdot \hbar/m_\pi c$		$R_0 = 2,72 \cdot \hbar/m_\pi c$	
		E_{prim} (BeV)	γ_s	E_{prim} (BeV)	γ_s
1,2	0,8	9,964	2,410	11,201	2,543
1,0	1,0	20,103	3,348	22,866	3,561
0,7	1,4	86,273	6,816	99,510	7,315
0,5	2,0	319,983	13,075	402,560	14,661
0,3	3,3	2792,0	38,572	3382,6	42,455
0,2	5,0	14390,6	87,558	16828,5	94,684

T wird in energetischen Einheiten der Größe $m_\pi c^2$ gemessen. Die Größe γ_s ist die auf ein einzelnes Nukleon im Schwerpunktsystem entfallende Gesamtenergie, gemessen in Einheiten Mc^2 . Es gilt also $E_{\text{prim}} = Mc^2 \cdot (2\gamma_s^2 - 1)$ sowie $E = w \cdot Mc^2 = 2\gamma_s \cdot Mc^2$.

Tabelle 2b. Nur von der Temperatur abhängende Größen

T^{-1}	Nukleonen		K -Mesonen		π -Mesonen		$\frac{N_K}{N_\pi}$
	a	b	a	b	a	b	
1,2	1,13	0,19	0,652	0,158	0,396	0,256	0,19
1,0	1,18	0,24	0,719	0,225	0,454	0,314	0,29
0,7	1,33	0,39	0,954	0,460	0,605	0,465	0,49
0,5	1,55	0,61	1,112	0,618	0,812	0,672	0,72
0,3	1,96	1,02	1,532	1,038	1,301	1,161	1,00
0,2	2,56	1,62	2,121	1,627	1,920	1,780	1,14

Die Spalten a bzw. b sind mittlere Gesamtenergie einschließlich der Ruhmasse bzw. mittlere kinetische Energie (alles in BeV gemessen). Die letzte Spalte gibt das Verhältnis der Anzahl der K -Mesonen zur Anzahl der π -Mesonen an. Dabei sind geladene und ungeladene Mesonen berücksichtigt.

Der in Tabelle 2 für die Parameterwerte $R_0 = 2,59 \cdot \hbar/m_\pi c$ bzw. $R_0 = 2,72 \cdot \hbar/m_\pi c$ enthaltene Zusammenhang zwischen der Primärenergie und der mittleren Energie der erzeugten π -Mesonen im Schwer-

punktsystem ist in Fig. 2 als Kurve *a* bzw. *b* eingetragen. Die Kurven *c*, *d*, *e* stellen die Aussagen der Gl. (15), (13), (14) dar. Die Vergleichskurve *f* wurde nach den Angaben HEISENBERGS¹³ [vgl. Anhang Formel (2A)] berechnet. Die mit + bezeichneten Stellen sind Meßergebnisse der Arbeiten¹⁻⁸. Sofern in diesen Arbeiten nur untere Grenzen angegeben werden konnten, sind die + bei diesen eingetragen. Wenn

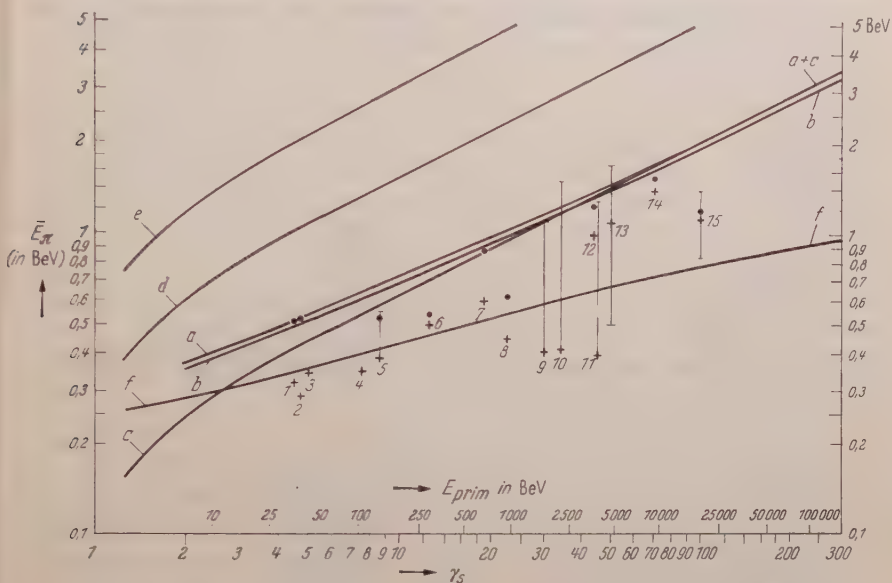


Fig. 2. Mittlere Energie der bei Nukleon-Nukleon-Stößen erzeugten π -Mesonen. Kurve *a* bzw. *b* beruht auf den Aussagen der Gl. (12) mit den Parameterwerten $R_0 = 2,59 \frac{\hbar}{m\pi c}$ bzw. $R_0 = 2,72 \frac{\hbar}{m\pi c}$. Die Kurven *c*, *d*, *e* stellen die Aussagen der Gl. (15), (13), (14) dar. Die Kurve *f* zeigt die von HEISENBERG¹³ angegebenen theoretischen Werte. Die mit ● bezeichneten Punkte sind in § 3 erklärt. (Statistische Theorie mit Berücksichtigung der jeweils beobachteten Inelastizität k .) Die mit + bezeichneten Punkte sind experimentelle Beobachtungen, und zwar: 1. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 5, $E_{\text{prim}} = 37$ BeV, $\gamma_s = 4,5$, $k = 100\%$, $\bar{E}_\pi = 0,32$ BeV. 2. K. GOTTSTEIN, M. TEUCHER², $E_{\text{prim}} = 40$ BeV, $\gamma_s = 4,7$, $k = 100\%$, $\bar{E}_\pi = 0,29$ BeV. 3. L. v. LINDERN⁴, Mittelwert aus vermessenen Einzelspuren von 7 Schauern, deren Primärenergie etwa $\gamma_s = 5$ entspricht, $\bar{E}_\pi = 0,35$ BeV. 4. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 4, $E_{\text{prim}} = 100$ BeV, $\gamma_s = 7,5$, $k = 50\%$, $\bar{E}_\pi = 0,35$ BeV. 5. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 3, $E_{\text{prim}} = 130$ BeV, $\gamma_s = 8,6$, $k = 40\%$, $\bar{E}_\pi = 0,39$ BeV, maximal = 0,55 BeV. 6. L. v. LINDERN⁴, $E_{\text{prim}} = 300$ BeV, $\gamma_s = 12,5$, $k \geq 21\%$, $\bar{E}_\pi \geq 0,50$ BeV. 7. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 6, $E_{\text{prim}} = 700$ BeV, $\gamma_s = 19$, $k = 75\%$, $\bar{E}_\pi = 0,60$ BeV. 8. V. D. HOPFER et al.¹, $E_{\text{prim}} = 1000$ BeV, $\gamma_s = 22,5$, $k = 10\%$, $\bar{E}_\pi = 0,45$ BeV. 9. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 1, $E_{\text{prim}} = 1700$ BeV, $\gamma_s = 30$, $k = 11\%$, maximal 31%, $\bar{E}_\pi > 0,41$ BeV, maximal 1,1 BeV. 10. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 2, $E_{\text{prim}} = 2200$ BeV, $\gamma_s = 34$, $k \geq 27\%$, $\bar{E}_\pi \geq 0,42$ BeV, maximal = 1,5 BeV. 11. E. LOHRMANN⁸, Schauer Nr. 7, $E_{\text{prim}} = 3800$ BeV, $\gamma_s = 45$, $k = 18\%$, $\bar{E}_\pi \approx 0,40$ BeV, maximal 1,3 BeV. 12. A. DEBENEDETTI et al.⁷, $E_{\text{prim}} = 3800$ BeV, $\gamma_s = 45$, $k = 72\%$, $\bar{E}_\pi = 1$ BeV. 13. E. LOHRMANN⁸, $1100 < E_{\text{prim}} < 12000$ BeV, $24,5 < \gamma_s < 80$, $1,7 \text{ BeV} > \bar{E}_\pi > 0,5 \text{ BeV}$. 14. F. D. HÄNNI et al.⁸, $E_{\text{prim}} = 10000$ BeV, $\gamma_s = 70$, $k = 70\%$, $\bar{E}_\pi = 1,4$ BeV. 15. M. SCHEIN et al.³, $E_{\text{prim}} = 20000$ BeV, $\gamma_s = 100$, $k = 12,5\%$, $\bar{E}_\pi = 1,14$ BeV.

außerdem eine Abschätzung der maximal möglichen Mesonenenergie gemacht wurde, ist diese durch einen aufgesetzten senkrechten Strich angedeutet (bei den Punkten 5, 9, 10, 11). Die bei den Ereignissen 13 bzw. 15 eingetragenen Fehlergrenzen entsprechen der oberen bzw.

unteren Grenze der Mesonenenergie, die sich ergibt, wenn man für die Primärenergie den kleinst- oder größtmöglichen Wert annimmt*. Bei den übrigen Punkten sind keine Angaben darüber gemacht worden, in welchen Grenzen das Meßergebnis noch variieren könnte, aber auch bei diesen ist mit mehr oder weniger großen Fehlern zu rechnen. Wegen der mit • bezeichneten Stellen vgl. § 3.

In Fig. 3 schließlich sind für vier verschiedene Primärenergien, bei denen Mesonenschauer beobachtet wurden (in Fig. 2 als Punkt 3, 6, 12

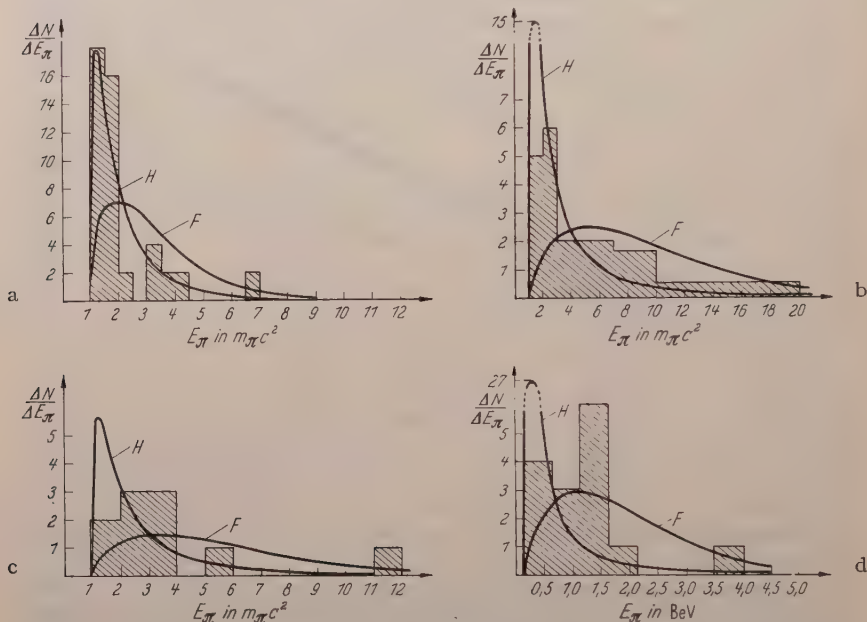


Fig. 3 a—d. Energiespektren von Mesonenschauern bei Nukleon-Nukleon-Stößen. *F* statistische Theorie von FERMI, *H* Stoßwellentheorie von HEISENBERG. a Theoretische Kurven für $E_{\text{prim}} = 21,5 \text{ BeV}$ ($\gamma_s = 3,45$). Das experimentelle Spektrum wurde aus mehreren Schauern mit $20 \text{ BeV} < E_{\text{prim}} < 60 \text{ BeV}$ gewonnen (L. v. LINDERN⁴, Fig. 4). b Theoretische Kurven für $E_{\text{prim}} = 364 \text{ BeV}$ ($\gamma_s = 13,9$). Das experimentelle Spektrum stellt einen von L. v. LINDERN beobachteten Schauer mit $E_{\text{prim}} = 300 \text{ BeV}$ ($\gamma_s = 12,5$) dar. (Private Mitteilung). c Theoretische Kurven für $E_{\text{prim}} = 3080 \text{ BeV}$ ($\gamma_s = 40,5$). Das experimentelle Spektrum stellt einen von DEBENEDETTI et al.⁷ beobachteten Schauer dar ($35 < \gamma_s < 55$). d Theoretische Kurven für $E_{\text{prim}} = 15\,500 \text{ BeV}$ ($\gamma_s = 91$). Das experimentelle Spektrum wurde von M. SCHEIN et al.⁸ beobachtet ($\gamma_s = 100$).

und 15 eingetragen), die Energieverteilungen der Mesonen aufgezeichnet worden. Die theoretische Kurve nach FERMI wurde mit $R_0 = 2,59 \hbar/m_\pi c$ berechnet, der Kurve nach HEISENBERG wurde die in ¹³ angegebene Formel zugrunde gelegt [identisch mit Formel (1 A) des Anhangs].

* Bei Punkt 13 liegt γ_s zwischen 25 und 80, \bar{E}_π entsprechend zwischen 1,7 und 0,5 BeV. Das + wurde bei einem mittleren γ_s und einem mittleren \bar{E}_π eingetragen. Bei Punkt 15 liegt γ_s zwischen 75 und 125, das + wurde bei dem nach Ansicht der Autoren wahrscheinlichsten Wert eingetragen ($\gamma_s = 100$).

§ 3. Diskussion der Resultate

Aus der Tabelle 1 hat sich ergeben, daß der Parameterwert $R_0 = 2,59 \hbar/m_\pi c$ die Beobachtungen bei der Antiprotonvernichtung gut beschreibt. Die mit demselben Parameterwert berechneten Mesonenenergien für den Fall der Erzeugung durch Nukleon-Nukleon-Stöße liegen aber immer noch um einen Faktor 1,4 bis 1,5 höher als die in Abb. 2 eingetragenen experimentellen Punkte. Abgesehen von einem solchen konstanten Faktor scheint die Abhängigkeit der Mesonenenergie von der Primärenergie richtig wiedergegeben zu werden, zumindest in dem Bereich bis zu 20000 BeV Primärenergie, in dem heute Beobachtungen vorliegen*. Zu Fig. 3 sei bemerkt, daß die Fermische Theorie die scharfen Maxima bei ganz niedrigen Mesonenenergien wie in Fig. 3a und 3c auch dann nicht liefern könnte, wenn der Wert für die mittlere Mesonenenergie sich noch weiter nach unten korrigieren ließe. Kürzlich berichtete auch E. LOHRMANN⁸ über verschiedene Ereignisse, bei denen 30 bis 40% der emittierten Mesonen eine Energie $\leq 2 \cdot m_\pi c^2$ besaßen. Aber viel weiteres experimentelles Material ist notwendig, bevor man über die Form des Energiespektrums zuverlässige Aussagen gewinnen kann.

Das Verhältnis der Anzahl der K -Mesonen zu der Anzahl der π -Mesonen, das in Tabelle 2b angegeben wurde, ist verglichen mit experimentellen Beobachtungen um einen Faktor 2 oder mehr zu groß. BRISBOUT u. Mitarb.¹⁹ berichten, daß bei den von ihnen beobachteten Ereignissen mit Primärenergien zwischen 1000 und 30000 BeV (im Mittel 4500 BeV) nur 25% der Schauerteilchen keine π -Mesonen waren. Neben einigen Nukleonen, die aus dem getroffenen Kern herausgeschossen wurden, handelte es sich in der Hauptsache um K -Mesonen. Hyperonen und Antinukleonen traten nur in geringem Maße auf. Die Autoren finden für das Verhältnis der Anzahl der geladenen K -Mesonen zu der Anzahl der geladenen π -Mesonen mit Hilfe zweier von einander

* Von P.H. FOWLER wurde auf der Rochester-Konferenz 1957 über ein Ereignis des Typs $1 + 6p$ mit einer Primärenergie von etwa 10^6 BeV (was $\gamma_s = 730$ entspricht) berichtet. Dieses scheint einen Nukleon-Nukleon-Stoß darzustellen und gestattet bei zwei Mesonen die Abschätzung der Energie. Ins Schwerpunktsystem umgerechnet ergibt sich $30 m_\pi c^2 = 4,2$ BeV. Die Formel (15) würde für obige Primärenergie den Wert 5,5 BeV liefern, also einen um den Faktor 1,3 höheren Wert. HEISENBERGS Theorie führt dagegen auf 1,12 BeV. Eine völlig offene Frage bleibt natürlich, ob die beobachteten Mesonenenergien einen für Primärenergien der Größe 10^6 BeV charakteristischen mittleren Wert darstellen oder nicht. Aber man sieht jedenfalls, daß weitere Beobachtungen in diesem Energiebereich die Frage entscheiden könnten, ob FERMIS oder HEISENBERGS Theorie die Abhängigkeit der mittleren Mesonenenergie von der Primärenergie besser beschreibt.

¹⁹ BRISBOUT, F.A., C. DAHANAYAKE, A. ENGLER, Y. FUJIMOTO u. D.H. PERKINS: Phil. Mag. 1, 605 (1956).

unabhängiger Methoden

$$f_{\pm} = \frac{N_{K^{\pm}}}{N_{\pi^{\pm}}} = 0,30 \pm 0,14 \quad \text{bzw.} \quad 0,33 \pm 0,16.$$

Unter Einschluß der neutralen Mesonen erhält man daraus

$$f = \frac{4/2 \cdot N_{K^{\pm}}}{3/2 \cdot N_{\pi^{\pm}}} = \frac{N_K}{N_{\pi}} \approx 0,40.$$

Bei der Berechnung dieser Zahlen sind alle von π -Mesonen verschiedenen Teilchen als K -Mesonen angesehen worden.

Das verhältnismäßig seltene Auftreten von Hyperonen und schweren Antiteilchen rechtfertigt, daß wir in § 2 die Erzeugung schwerer Teilchen vernachlässigt haben. Nach all dem scheint es so, als sei der Bruchteil der beim Stoß umgesetzten Energie, der auf alle von π -Mesonen verschiedenen Teilchen entfällt, insgesamt kleiner als der Bruchteil, den man nach der theoretischen Rechnung von § 2 allein den K -Mesonen zubilligen würde. Eine Abänderung der in die Theorie eingehenden statistischen Gewichte in der Weise, daß alle Teilchensorten mit der Häufigkeit erzeugt werden, die den experimentellen Produktionsraten entspricht, kann daher keineswegs zu niedrigeren Energien für die π -Mesonen führen, sondern diese allenfalls erhöhen.

Eine bescheidene Möglichkeit, die Resultate von § 2 weiter zu verbessern, besteht noch darin, auch die Möglichkeit von nur teilweise inelastischen Stößen ins Auge zu fassen. Dies würde der experimentell am häufigsten eintretenden Situation entsprechen, aber eine Abänderung von FERMI'S Annahme 1 bedingen. Diese wäre zu ersetzen durch die Annahme, daß jetzt die stoßenden Nukleonen nicht mehr am Temperaturgleichgewicht teilnehmen, sondern lediglich einen Bruchteil $k \cdot (E - 2 \cdot M c^2)$ ($0 \leq k \leq 1$) ihrer gesamten, im Schwerpunktsystem mitgeführten kinetischen Energie im Volumen Ω freisetzen. Nur dieser Bruchteil $k \cdot (E - 2 \cdot M c^2)$ wäre dann für die Höhe der Gleichgewichtstemperatur verantwortlich, d.h. die Gl. (1) wäre zu ersetzen durch

$$k \cdot (E - 2 \cdot M c^2) = \varepsilon(T) \cdot \Omega. \quad (16)$$

Um die Konsequenzen dieser Annahme zu übersehen, überlege man sich, daß mit (16) der Faktor $(w-2)$ in Gl. (15) einfach durch $(w-2) \cdot k$ zu ersetzen wäre, d.h. daß die durch (15) gegebene mittlere Mesonenenergie noch mit dem Faktor $\sqrt[4]{k}$ zu multiplizieren wäre. Die Größe k wird bei den meisten experimentellen Untersuchungen abgeschätzt. Unsere Annahme kann daher direkt nachgeprüft werden und führt zu den in Fig. 2 mit \bullet bezeichneten Werten. Ein Vergleich der Ereignisse 7 und 8 und ebenso 14 und 15 läßt unsere Annahme plausibel erscheinen, aber auch so scheinen die theoretischen Werte immer noch ein gutes Stück höher als die experimentellen zu sein.

Schließlich ist auch noch darauf hinzuweisen, daß die Abweichungen der berechneten π -Mesonenenergien von den experimentellen Werten wenigstens zum Teil auch von experimentellen Unsicherheiten herühren können. Die experimentellen Fehler können beträchtlich sein, aber ihre wirkliche Größe ist schwer abzuschätzen. Für die Energie der Mesonen, besonders der im Schwerpunktsystem in Vorwärtsrichtung emittierten, kann in vielen Fällen nur eine untere Grenze angegeben werden, oft ist nur bei einem Teil der Spuren eine Vermessung möglich, und schließlich kann auch die Primärenergie des Ereignisses nur grob abgeschätzt werden. Zwar gibt es hierfür mehrere von einander unabhängige Methoden, doch hängt ihre jeweilige Anwendbarkeit von dem Aussehen des Ereignisses und dem in Frage kommenden Energiebereich ab. Wie SYMANZIK gezeigt hat*, kann die Unkenntnis des wirklichen Energiespektrums der Mesonen und ihrer Winkelverteilung im Schwerpunktsystem zu erheblichen Fehlern führen. So würde die oft benutzte Formel $\gamma_s = 1/\text{tg } \Theta_L(\frac{1}{2})$ bei anisotroper Emission und Vorliegen eines Heisenbergschen Energiespektrums die Primärenergie um einen Faktor 2 zu hoch abschätzen. Ferner wird stets angenommen, daß alle emittierten Schauerteilchen π -Mesonen seien, denn eine genaue Identifizierung ist meistens unmöglich. Wenn dabei ein K -Meson oder Nukleon bzw. Antinukleon irrtümlich als π -Meson angesprochen wird, so kann dies bei Emission in Rückwärtsrichtung (und nur dann) einen merklichen Einfluß auf die Bestimmung der Primärenergie haben. Die Energie des Schauerteilchens wird bei Annahme der π -Mesonenmasse zu niedrig, die Primärenergie dagegen zu groß berechnet. Ein Beispiel dafür wird ausführlich bei M. SCHEIN u. Mitarb.³ [Nuovo Cim. 2, 647 (1955)] diskutiert.

Trotz aller experimentellen Unsicherheiten wird man zugeben müssen, daß auch zwischen der hier dargestellten, verbesserten statistischen Theorie und dem Experiment noch Diskrepanzen bestehen, wenn auch deren Größe nur schwer abzuschätzen ist. Wenn man die mittleren Mesonenenergien durch eine weitere Vergrößerung des Reaktionsvolumens noch um einen Faktor 1,4 bis 1,5 herabsetzen wollte, so würde man auf Parameterwerte $R_0 = 4 \cdot \frac{\hbar}{m_\pi c}$ bis $4,5 \cdot \frac{\hbar}{m_\pi c}$ geführt. Dies würde dem 65- bis 90fachen des von FERMI gewählten Reaktionsvolumens entsprechen. Zwar würde durch eine solche Maßnahme auch gleichzeitig die Situation hinsichtlich der Energiespektren und des Verhältnisses von K - zu π -Mesonen verbessert, aber eine physikalische Deutung eines so großen Reaktionsvolumens würde sehr schwierig sein. Vom Standpunkt der statistischen Theorie wäre es auch schwer verständlich, warum beide Prozesse, die Mesonenerzeugung bei der Antiprotonvernichtung und die bei Nukleon-Nukleon-Stößen, mit so verschiedenen

* Vgl.¹⁴, S. 563 oder auch LINDERN, L. v.: Nuovo Cim. 5, 491 (1957).

Parameterwerten gekoppelt sein sollten; denn in jedem Fall sind die primär vorhandenen Teilchen schwere Teilchen und auch die Wechselwirkungen, die für die Mesonenerzeugung verantwortlich sind, sind beidemale die gleichen*.

Ich danke Herrn Professor J.H.D. JENSEN für die Anregung zu dieser Arbeit sowie für wertvolle Hinweise. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich dafür, daß sie durch ein Stipendium die Durchführung dieser Arbeit ermöglicht hat.

Anhang

Die Proton-Antiproton-Vernichtung im Bilde von HEISENBERGS Theorie der Vielfacherzeugung von π -Mesonen

Nach HEISENBERGS Überlegungen^{13, 14} spielt sich der Prozeß der Mesonenvielfacherzeugung bei Nukleon-Nukleon-Stößen in 2 Phasen ab. In der ersten wird durch den Stoß innerhalb eines kleinen Raumgebietes um die Nukleonen das π -Mesonenfeld sehr stark angeregt, wobei ein Teil der Primärenergie der Nukleonen auf das Mesonenfeld übertragen wird. In der zweiten Phase beginnt sich die Erregung des Mesonenfeldes nach einer nichtlinearen Wellengleichung unter starker Energiedissipation auszubreiten, bis sich eine bestimmte Teilchenzahl herausgebildet hat und die Wechselwirkung der einzelnen Mesonen untereinander nur noch schwach ist. In diesem Endstadium des Prozesses ist das Spektrum der Mesonen gegeben durch

$$dN_{\pi} = \text{const.} \cdot \frac{\sqrt{E_{\pi}^2 - m_{\pi}^2 c^4}}{E_{\pi}} \cdot \frac{1}{E_{\pi}^2} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{E_{\pi}}{E_{\pi 0}}\right)^2} dE_{\pi} \quad (1A)$$

(N_{π} = Mesonenzahl, E_{π} = Mesonenenergie einschließlich der Ruhmasse). Das Glied $(1 + (E_{\pi}/E_{\pi 0})^2)^{-1}$ ist ein Abschneidefaktor und hat die Aufgabe, die Gesamtenergie endlich zu machen. Der Parameter $E_{\pi 0}$ besitzt eine anschauliche Bedeutung dadurch, daß die Länge $\hbar c/E_{\pi 0}$ die Ausdehnung eines stoßenden Nukleons in der Bewegungsrichtung sein soll.

Wenn man die Mesonenausstrahlung bei der Nukleon-Antinukleon-vernichtung nach demselben Schema beschreiben will, so unterscheidet sie sich von der Vielfacherzeugung bei Nukleon-Nukleon-Stößen nur in der ersten Phase: Die gesamte Energie der beiden Teilchen einschließlich der Massen wird jetzt zur Erregung des π -Mesonenfeldes aufgewandt, die zweite Phase verläuft genau wie oben. Dabei muß jedoch angenommen werden, daß schon die relativ kleine Energie von 2 BeV ausreicht,

* Nach Fertigstellung der Arbeit erfuhr ich durch Herrn E. LOHRMANN, daß das von S. KANEKO et al.¹⁰ beobachtete Ereignis vom Typ $1 + 5p$ ist und bei einer Primärenergie von 25 BeV ($\gamma_s = 3,72$) die mittlere Energie der π -Mesonen im Schwerpunktsystem 0,31 BeV beträgt. Die Inelastizität ist $k = 40\%$. Theoretisch würde sich bei dieser Primärenergie für die Mesonenenergie 0,47 BeV bzw. bei Berücksichtigung der Inelastizität 0,38 BeV ergeben.

um die Voraussetzungen der Stoßwellentheorie zu befriedigen. Wenn das Energiespektrum (1A) gegeben ist, dann ist die beobachtete mittlere Energie

$$\bar{E}_{\pi} = \frac{E}{N_{\pi}} = \frac{4m_{\pi}c^2}{\pi} \cdot \frac{-1 + \sqrt{1 + \alpha^2} \ln \frac{1 + \sqrt{1 + \alpha^2}}{\alpha}}{1 + 2\alpha^2 - 2\alpha \sqrt{1 + \alpha^2}} \quad (2A)$$

mit $\alpha = \frac{m_{\pi}c^2}{E_{\pi o}}$. Der in (1A) auftretende Abschneideparameter $E_{\pi o}$ kann im Gegensatz zu den Nukleon-Nukleon-Stößen hier nicht durch eine einfache theoretische Abschätzung vorhergesagt werden. Er muß mit Hilfe des Experiments bestimmt werden, und zwar so, daß $\bar{E}_{\pi} = 346 \text{ MeV}$ ¹⁶ wird. Man erhält für ein langsames Nukleon-Antinukleon-Paar ($E = 13,45 m_{\pi}c^2 = 1,877 \text{ BeV}$):

α^{-1}	N_{π}	E_{π} (in MeV)	$\frac{\hbar c}{E_{\pi o}}$	
4	5,55	338	$0,354 \cdot 10^{-13}$	2,60
4,5	5,38	349	$0,315 \cdot 10^{-13}$	2,14
5	5,23	359	$0,283 \cdot 10^{-13}$	1,92

Die vorletzte bzw. letzte Spalte geben die auftretende charakteristische Länge $\hbar c/E_{\pi o}$ in cm bzw. in Compton-Wellenlängen des Nukleons an. Die in Fig. 1 eingetragene Kurve ist mit $\alpha^{-1} = 4,5$ berechnet. Aus (1A) läßt sich noch berechnen, welcher Bruchteil der Mesonen eine Gesamtenergie $E_{\pi} < E_{\pi o}$ besitzt und ein wie großer Teil des Spektrums über den größten, bei Berücksichtigung von Energie und Impulserhaltung zulässigen Wert von E_{π} ($E_{\max} = 938,5 \text{ MeV}$) hinausreicht. Es ergibt sich

α^{-1}	Theoretisch		Experimentell
	$E_{\max} > E_{\pi} > E_{\pi o}$	$E_{\pi} > E_{\max}$	$E_{\pi} > E_{\pi o}$
4	8,26%	2,75%	7 %
4,5	6,14%	3,17%	3,5%
5	4,45%	3,59%	0 %

Die letzte Spalte gibt die experimentellen Werte an und ist mit der ersten zu vergleichen.

Aus dem Physikalischen Staatsinstitut Hamburg

Zur Frage der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen

Von

PETER STICHEL

(Eingegangen am 25. Oktober 1957)

Die Untersuchung bestimmter Asymmetriceffekte bei der Messung der linearen Polarisation der γ -Strahlung oder der γ - γ -Winkelkorrelation von polarisierten Kernen liefert eine Aussage über die Invarianz der starken Wechselwirkungen gegenüber Zeitumkehr.

Einleitung

Nachdem in den letzten Monaten durch eine Reihe von Experimenten¹ sichergestellt wurde, daß die schwachen Wechselwirkungen nicht-invariant gegenüber Raumspiegelung und Ladungskonjugation sind, erhebt sich die Frage, inwieweit physikalische Wechselwirkungen überhaupt gegenüber den Symmetrioperationen* invariant sind.

Ein bis heute noch völlig offenes Problem ist die Frage der Invarianz der Wechselwirkungen gegenüber Zeitumkehr**. Zur Prüfung der Zeitumkehrinvarianz in schwachen Wechselwirkungen wurden verschiedene Experimente vorgeschlagen², die ersten Messungen von AMBLER u. Mitarb.³ sowie von STEFFEN⁴ lassen jedoch noch keine eindeutige Aussage zu.

* Unter einer Symmetrioperation versteht man eine Abbildung R des Hilbert-Raumes auf sich selbst derart, daß $R^n \cong 1$ für bestimmtes n gilt. (K. SYMANZIK: Vorlesung in Oberwolfach, Sept. 1957) Bekannte Symmetrioperationen sind: Raumspiegelung, Ladungskonjugation, Zeitumkehr und ihre Kombinationen.

** Unter Zeitumkehr soll immer „Zeitumkehr im Sinne von WIGNER“ (gleichbedeutend mit Bewegungsumkehr) verstanden werden. Zur Definition der Bewegungsumkehr vgl. LÜDERS, G.: Z. Physik **133**, 325 (1952).

¹ WU, C. S., E. AMBLER, R. W. HAYWARD, D. D. HOPPEs u. R. P. HUDSON: Phys. Rev. **105**, 1413 (1957). — GARWIN, R. L., L. M. LEDERMANN u. M. WEINRICH: Phys. Rev. **105**, 1415 (1957). — FRAUENFELDER, H., R. BOBONE, E. VON GOELER, N. LEVINE, H. R. LEWIS, R. N. PEACOCK, A. ROSSI u. G. DE PASQUALI: Phys. Rev. **106**, 386 (1957). — SCHOPPER, H.: Phil. Mag. **2**, 710 (1957).

² JACKSON, J. D., S. B. TREIMAN u. H. W. WYLD: Nuclear Phys. **4**, 206 (1957). — LEE, T. D., R. OEHME u. C. N. YANG: Phys. Rev. **106**, 340 (1957). — CURTIS, R. B., u. R. R. LEWIS: Phys. Rev. **107**, 543, 1381 (1957). — MORITA, M., u. R. S. MORITA: Phys. Rev. **107**, 1316 (1957). — KOTANI, T.: UCRL-3704. — STICHEL, P.: Unpubl. Report Physikal. Staatsinst. Hamburg.

³ AMBLER, E., R. W. HAYWARD, D. D. HOPPEs u. R. P. HUDSON: Untersuchung von $(\langle \vec{J} \rangle, \vec{p} \times \vec{k})$ ($\langle \vec{J} \rangle, \vec{k}$) an ausgerichteten Co^{58} -Kernen. Phys. Rev. **108**, 503 (1957).

⁴ STEFFEN, R. M.: Untersuchung der transv. Elektronenpolarisation an Au^{198} -Kernen (private Mitteilung von H. FRAUENFELDER).

Durch kürzlich durchgeführte Experimente von N. TANNER⁵ wurde gezeigt, daß der paritätsverletzende Anteil an der Wellenfunktion eines Systems mit starker Wechselwirkung kleiner als 10^{-3} ist. Es erhebt sich nun die Frage der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen, welche bei Gültigkeit des TCP-Theorems⁶ (dieses gilt nach den neuesten Untersuchungen von R. JOST⁷ unter bestimmten Voraussetzungen auch für nichtlokale Wechselwirkungen) und bei exakter Erhaltung der Parität mit der Frage nach der Invarianz gegenüber Ladungskonjugation identisch ist.

E. M. HENLEY und B. A. JACOBSON⁸ betrachteten kürzlich die experimentellen Daten einiger Kernreaktionen und ihrer Umkehrreaktionen (ohne Polarisierungseffekte) und fanden durch Vergleich mit dem Prinzip des detaillierten Gleichgewichts, daß der Beitrag der die Zeitumkehr verletzenden Kernkräfte möglicherweise 10 bis 20% betragen kann.

Wie L. I. LAPIDUS zeigte⁹, besteht bei Zeitumkehrinvarianz ein definierter Zusammenhang zwischen Polarisationsphänomenen in Vor- und Rückwärtsreaktionen. Die experimentelle Untersuchung dieses Zusammenhangs führt also zu einer Aussage über Zeitumkehrinvarianz.

Eine andere Gruppe von Experimenten zur Prüfung der Zeitumkehrinvarianz bildet die Untersuchung von Termen in den Winkel- und Polarisationskorrelationen von Kernemissionsprozessen und Kernreaktionen, die bei Zeitumkehr ihr Vorzeichen ändern. Derartige Terme kann man aus einer ungeraden Anzahl von Vektoren aufbauen, deren Vorzeichen sich bei Zeitumkehr ändert (dies sind Pseudovektoren zweiter oder dritter Art, je nachdem, ob sie gegenüber Raumspiegelung polare oder axiale Vektoren sind). Drehinvarianz und — bei starken Wechselwirkungen — Paritätserhaltung müssen von diesen Termen gewahrt bleiben. T. D. LEE und C. N. YANG¹⁰ schlugen die Messung des Terms* $(\vec{p}, \vec{k}_1 \times \vec{k}_2) (\vec{k}_1, \vec{k}_2)^{2n-1}$ in einem $\beta - \gamma_1 - \gamma_2$ -Übergang als Test der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen vor. Dieser Vorschlag ist ein Spezialfall der weiter unten betrachteten $\gamma - \gamma$ -Winkelkorrelation von polarisierten Kernen (Polarisationsvektor $\langle \vec{J} \rangle$), in denen ein Term $(\langle \vec{J} \rangle, \vec{k}_1 \times \vec{k}_2) (\vec{k}_1, \vec{k}_2)^{2n+1}$ gegenüber Zeitumkehr empfindlich ist. Eine weitere Möglichkeit ergibt sich aus der Messung der γ -Richtungspolarisationskorrelation von polarisierten Kernen. (Unter γ -Richtungs-

* \vec{k} und \vec{p} sollen hier und im folgenden stets Einheitsvektoren in Richtung des γ - bzw. β -Impulses darstellen.

⁵ TANNER, N.: Phys. Rev. **107**, 1203 (1957).

⁶ LÜDERS, G.: Ann. of Phys. **2**, 1 (1957).

⁷ Private Mitteilung von H. LEHMANN und W. R. THEIS.

⁸ HENLEY, E. M., u. B. A. JACOBSON: Phys. Rev. **108**, 502 (1957).

⁹ LAPIDUS, L. I.: Nuclear Phys. **4**, 145 (1957).

¹⁰ Private Mitteilung von H. FRAUENFELDER.

polarisationskorrelation versteht man die Messung der linearen γ -Polarisation gegenüber einer Ebene, die durch \vec{k} und einen weiteren, durch den physikalischen Prozeß definierten Vektor aufgespannt wird). Der zu untersuchende Term hat dann die Form $(\vec{\varepsilon}, \langle \vec{J} \rangle \times \vec{k}) (\vec{\varepsilon}, \langle \vec{J} \rangle) (\langle \vec{J} \rangle, \vec{k})^{2n+1}$, wenn $\vec{\varepsilon}$ der lineare Polarisationsvektor des γ -Quants ist*.

Die Konstruktion der Terme $(\langle \vec{J} \rangle, \vec{k}_1 \times \vec{k}_2) (\vec{k}_1, \vec{k}_2)^{2n+1}$ und $(\vec{\varepsilon}, \langle \vec{J} \rangle \times \vec{k}) (\vec{\varepsilon}, \langle \vec{J} \rangle) (\langle \vec{J} \rangle, \vec{k})^{2n+1}$ folgt unmittelbar aus den oben angeführten Regeln:

Beide Terme ändern bei Zeitumkehr gemäß den Transformationsregeln¹¹ $\vec{k} \rightarrow -\vec{k}$, $\langle \vec{J} \rangle \rightarrow -\langle \vec{J} \rangle$, $\vec{\varepsilon} \rightarrow -\vec{\varepsilon}$ ihr Vorzeichen. Drehinvarianz folgt aus der Schreibweise der Terme als Skalarprodukte von Vektoren. Paritätserhaltung in der starken Wechselwirkung ist durch das quadratische Auftreten der \vec{k} und $\vec{\varepsilon}$ für jeden einzelnen γ -Übergang gesichert. Berechnet man die γ -Übergangswahrscheinlichkeit mit Störungsrechnung in niedrigster Ordnung, so kann $\vec{\varepsilon}$ nur in der nullten oder zweiten Potenz auftreten, da der Wechselwirkungsoperator, der die Emission eines γ -Quants beschreibt, $\vec{\varepsilon}$ linear enthält.

Bei γ -Übergängen äußert sich die Zeitumkehrinvarianz darin, daß die reduzierten Matrixelemente A_L der Multipoloperatoren- oder Übergangsamplituden für Multipolstrahlung der Ordnung L - (ihre genaue Definition ist im Anhang enthalten) reelle Zahlen sind¹². Die die Zeitumkehrinvarianz verletzenden Terme in den beiden angegebenen Experimenten haben die Form:

$Im(A_L A_L^*) \times$ Term mit einer ungeraden Anzahl von Pseudovektoren zweiter und dritter Art.

In beiden Fällen muß also der erste γ -Übergang ein gemischter Multipolübergang sein.

Ein gemischter γ_2 -Übergang in einer $\gamma_1 - \gamma_2$ -Kaskade von polarisierten Kernen kann keinen Anlaß zum Auftreten eines gegenüber Zeitumkehr empfindlichen Terms liefern, da zu dessen Konstruktion nur der Kernpolarisationsvektor nach dem γ_1 -Übergang $\langle \vec{J} \rangle'$ und \vec{k}_2 zur Verfügung stehen**.

I. γ -Richtungspolarisationskorrelation von polarisierten Kernen

Berechnet man nach den Standardmethoden der Theorie der Winkelkorrelationen¹² die γ -Richtungspolarisationskorrelation von polarisierten

* Nach Fertigstellung des Manuskriptes erfuhr ich durch Professor Dr. E. M. HENLEY von ähnlichen Vorschlägen (ohne Angabe von Formeln). Vgl. JACOBSON, B. A., u. E. M. HENLEY: Abstract to the Stanford California Meeting of the American Physical Society, Dec. 19–21, 1957.

** Dieses Argument verdanke ich Herrn Professor Dr. E. M. HENLEY (briefliche Mitteilung).

¹¹ LÜDERS, G.: Z. Physik **133**, 325 (1952).

¹² ROSE, M. E., u. L. C. BIEDENHARN: Rev. Mod. Phys. **25**, 729 (1953).

Kernen mit dem Polarisationsvektor*

$$\langle \vec{J} \rangle = \frac{\sum_{\mu} W(\mu) \langle \vec{J} | \vec{J} \rangle_{\mu}}{\sum_{\mu} W(\mu)}, \quad (1)$$

so erhält man für die Korrelationsfunktion $W(\Theta, \varphi)$ den Ausdruck

$$W(\Theta, \varphi) = \sum_{L, L', n} F_n(LL' j_b j) f_n(j) Q_n^{\pi_{L'}}(\Theta, \varphi; LL') \quad (2)$$

mit**

$$\begin{aligned} Q_n^{\pi_{L'}}(\Theta, \varphi; LL') &= [\delta_{n, \text{gerade}} \text{Real}(A_L A_{L'}^*) P_{n,0}(\Theta) + P_{n,2}(\Theta) \times \\ &\times \left[\frac{(n-2)!}{(n+2)!} \right]^{\frac{1}{2}} (-1)^{\pi_{L'}} \frac{C(LL' n, 11)}{C(LL' n, 1-1)} (\cos 2\varphi \text{Real}(A_L A_{L'}^*) \delta_{n, \text{gerade}} + \\ &+ \sin 2\varphi \text{Im}(A_L A_{L'}^*) \delta_{n, \text{ungerade}}) \end{aligned}$$

und

$$f_n(j) = \sum_{\mu} W(\mu) (-1)^{j-\mu} C(j j n, \mu - \mu).$$

Dabei bezeichnen j, j_b den Kernspin im Anfangs- bzw. Endzustand und Θ den Winkel zwischen der Quantisierungsachse (Richtung $\vec{\eta}$ des äußeren Magnetfeldes, welches zur Ausrichtung der Kerne dient) und der γ -Richtung \vec{k} .

Der Polarisationswinkel φ ist durch

$$\cos \varphi = \frac{(\vec{\varepsilon}, \vec{k} \times \vec{\eta})}{|\vec{k} \times \vec{\eta}|} \quad \sin \varphi = - \frac{(\vec{\varepsilon}, \vec{\eta})}{|\vec{\eta}|} \quad (3)$$

definiert, d.h. wachsendes φ bedeutet Drehung von $\vec{\varepsilon}$ im Rechtsschraubensinne um \vec{k} . A_L ist die Amplitude der Multipolstrahlung von der Ordnung L (zu ihrer Definition vgl. den Anhang), $P_{n,m}$ sind zugeordnete Legendre-Polynome erster Art, $C(abc, \alpha\beta)$ Clebsch-Gordan-Koeffizienten und $F_n(LL' j_b j)$ Funktionen, die durch

$$\begin{aligned} F_n(LL' j_b j) &= (-1)^{j_b-j-1} [(2L+1)(2L'+1)(2j+1)]^{\frac{1}{2}} \times \left\{ \right. \\ &\times C(LL' n, 1-1) W(j j LL', n j_b) \left. \right\} \end{aligned} \quad (4)$$

* Das heißt man wählt die Quantisierungsachse derart, daß die Dichtematrix für die Beschreibung des polarisierten Kernes diagonal ist. Eine solche Quantisierungsachse liefert die Richtung des äußeren Magnetfeldes $\vec{\eta}$. Damit läßt sich der Polarisationsvektor als $\langle \vec{J} \rangle = \sum_{\mu} W(\mu) \mu \vec{\eta} / j \sum_{\mu} W(\mu)$ schreiben [vgl. auch ТОЛХОЕК, H.A., u. J.A.M. Cox: Physica, Haag 19, 101 (1953)].

** $\delta_{n, \text{gerade}}$ und $\delta_{n, \text{ungerade}}$ sind Kronecker-Symbole mit der Bedeutung

$$\delta_{n, \text{gerade}} = \begin{cases} 0 & n \text{ ungerade} \\ 1 & n \text{ gerade} \end{cases} \quad \delta_{n, \text{ungerade}} = \begin{cases} 0 & n \text{ gerade} \\ 1 & n \text{ ungerade} \end{cases}$$

definiert, für gerade n bei ROSE und BIEDENHARN¹² und für $n=1; 3$ bei ALDER, STECH und WINTHER¹³ tabelliert sind. $(-1)^{\pi_{L'}}$ nimmt die Werte $+1$ oder -1 an, je nachdem, ob L' elektrische oder magnetische Multipolstrahlung ist.

Aus der Definition der $Q_n^{\pi_{L'}}(\Theta, \varphi; LL')$ in (2) ist ersichtlich, daß die Korrelation nur dann die gegen Zeitumkehr empfindlichen Terme enthält, wenn $f_n(j)$ für wenigstens ein ungerades n mit $n \geq 3$ von Null verschieden ist (eine notwendige Voraussetzung dafür ist: $j \geq 3/2$).

Aus (2) ersieht man, daß Zeitumkehrinvarianz genau dann gilt, wenn die durch die Gleichung

$$B = \frac{W\left(\Theta = \frac{\pi}{4}, \varphi = \frac{\pi}{4}\right) - W\left(\Theta = \frac{\pi}{4}, \varphi = -\frac{\pi}{4}\right)}{W\left(\Theta = \frac{\pi}{4}, \varphi = \frac{\pi}{4}\right) + W\left(\Theta = \frac{\pi}{4}, \varphi = -\frac{\pi}{4}\right)} \quad (5)$$

definierte Asymmetrie B verschwindet.

Geht man bei der Untersuchung der Korrelation (2) nicht von polarisierten, sondern von unpolarisierten Kernen aus, so kann man durch die Messung des Negaton-(Positon-)Impulses bei einem vorhergehenden β -Übergang oder der zirkularen Polarisation bei einem vorhergehenden γ -Übergang Kerne mit einer definierten Polarisation aussortieren. Bei der Messung des β -Impulses wird wesentlich die Tatsache der Nichterhaltung der Parität¹ in schwachen Wechselwirkungen benutzt, die eine Polarisation des Kernes nach einem β -Übergang in bezug auf die β -Impulsrichtung zur Folge hat.

Bei einem Übergang $j_a \xrightarrow{\beta} j \xrightarrow{\gamma} j_b$ gilt für die $f_n(j)$ in bezug auf \vec{p} als Quantisierungsachse nach ALDER, STECH und WINTHER^{13*}

$$f_n^\beta(j) = \sum_{L_\beta, L'_\beta} F_n(L_\beta L'_\beta j_a j) b_n(L_\beta L'_\beta). \quad (6)$$

Die $b_n(L_\beta L'_\beta)$ sind Partikelparameter für den β -Zerfall, die in¹³ tabelliert sind**. Die Bedingung an die $f_n^\beta(j)$ bedeutet jetzt, daß der β -Übergang ein verbotener sein muß. Bei den „1-verbotenen“ Übergängen ist der die Zeitumkehr verletzende Term proportional den Kernmatrixelementen $|B_{ij}|$. Es muß bemerkt werden, daß die Struktur der $f_n^\beta(j)$ nach (6)

* Der Index an $f_n(j)$ weist im folgenden auf die Art der Herstellung der Kernpolarisation hin.

** Zwischen den β -Partikelparametern von MORITA $b_{L_\beta L'_\beta}^{(n)}$ und denen von ALDER, STECH und WINTHER $b_n(L_\beta L'_\beta)$ besteht folgender Zusammenhang:

$$(-1)^{j_a - j} (2j + 1)^{\frac{1}{2}} W(j j L_\beta L'_\beta n j_a) b_{L_\beta L'_\beta}^{(n)} \equiv 4 F_n(L_\beta L'_\beta j_a j) b_n(L_\beta L'_\beta).$$

¹³ ALDER, K., B. STECH u. A. WINTHER: Phys. Rev. **107**, 728 (1957). Vgl. auch MORITA, M., u. R. S. MORITA: Erscheint demnächst in Phys. Rev.

unabhängig von der Gültigkeit oder Verletzung der Zeitumkehrinvarianz in der β -Wechselwirkung ist.

Für einen Übergang $j_a \xrightarrow{\gamma_0} j \xrightarrow{\gamma} j_b$ gilt für die $f_n(j)$ in bezug auf \vec{k}_0 als Quantisierungsachse nach BIEDENHARN und ROSE¹²

$$f'_n(j) = \sum_{L_0 L'_0} (-1)^{L_0 + L'_0} \text{Real}(A_{L_0} A_{L'_0}^*) \tau_0^n F_n(L_0 L'_0 j_a j). \quad (7)$$

τ_0 nimmt die Werte $+1$ für ein rechtszirkulares und -1 für ein linkszirkulares Quant an. Die Bedingung an die $f'_n(j)$ bedeutet, daß $L_0 \geq 2$ sein muß.

Die Korrelationsfunktion $W(\Theta, \varphi)$ für den $\beta - \gamma$ -Übergang bzw. den $\gamma_0 - \gamma$ -Übergang erhält man dann durch Einsetzen von (6) bzw. (7) in (2).

II. $\gamma - \gamma$ -Winkelkorrelation von polarisierten Kernen

Für die $\gamma - \gamma$ -Winkelkorrelation von polarisierten Kernen erhält man nach den üblichen Methoden¹²

$$W(\vec{\eta}, \vec{k}_1, \vec{k}_2) = \sum \text{Real}(A_{L_2} A_{L'_2}^*) F_s(L_2 L'_2 j_b j') A_{L_1} A_{L'_1}^* \times \\ \times \bar{K}(j' L_1 L'_1 j, s s' n) C(s s' n, \tau - \tau) f_n(j) Y_{s, -\tau}(\Theta_2, \varphi_2) Y_{s', \tau}(\Theta_1, \varphi_1). \quad (8)$$

Die Summation erstreckt sich über $L_2 L'_2, L_1, L'_1, n, \tau, s, s'$; s und s' dürfen nur gerade Werte annehmen.

$Y_{s, \tau}$ sind normierte Kugelflächenfunktionen; $(\Theta_2, \varphi_2), (\Theta_1, \varphi_1)$ Polar- und Azimuthwinkel von \vec{k}_2 bzw. \vec{k}_1 in einem Koordinatensystem mit $\vec{\eta}$ als Quantisierungsachse (z -Achse). Eine Vereinfachung erhält man durch die Festlegung, daß \vec{k}_1 und $\vec{\eta}$ die $x - z$ -Ebene definieren. Dann gilt $\varphi_1 = 0$.

Die Spinfolge lautet $j \xrightarrow{\gamma_1} j' \xrightarrow{\gamma_2} j_b$.

Für die $\bar{K}(j' L_1 L'_1 j, s s' n)$ gilt

$$\bar{K}(j' L_1 L'_1 j, s s' n) \equiv [(2L_1 + 1)(2L'_1 + 1)(2j + 1)(2j' + 1)]^{\frac{1}{2}} \times \\ \times (-1)^{L_1 + 1} C(L_1 L'_1 s', 1 - 1) \left\{ \begin{matrix} s s' n \\ j' L_1 j \\ j' L'_1 j \end{matrix} \right\}. \quad (9)$$

Die $\left\{ \begin{matrix} s s' n \\ j' L_1 j \\ j' L'_1 j \end{matrix} \right\}$ sind Wignersche „9j-Symbole“ (auch X -Koeffizienten genannt)¹⁴.

Für gerade n sind die „9j-Symbole“ in Referenz¹⁵ tabelliert, für ungerade n erhält man leicht numerische Werte durch Benutzung ihrer

¹⁴ Zur Definition der „9j-Symbole“ vgl. SHALIT, A. DE: Phys. Rev. **91**, 1479 (1953).

Definitionsgleichung¹⁴ und einer Tabelle über Racah-Koeffizienten (z.B. Referenz¹⁵). Für $n=0$ nimmt die \bar{K} -Funktion den speziellen Wert

$$\bar{K}(j' L_1 L_1' j, s s' 0) = \delta_{ss'} (2s+1)^{-\frac{1}{2}} (-1)^{L_1+L_1'} F_s(L_1 L_1' j j') \quad (10)$$

an. Aus den Eigenschaften der „ $9j$ -Symbole“ folgt als Symmetrierelation für die \bar{K} -Funktion¹⁴

$$(-1)^{s+s'+n} \bar{K}(j' L_1' L_1 j, s s' n) = \bar{K}(j' L_1 L_1' j, s s' n). \quad (11)$$

Für den Wertebereich der Indizes s, s' und n ergeben sich aus der Definition der F und \bar{K} -Koeffizienten in (8) die Auswahlregeln

$$\left. \begin{aligned} |L_2 - L_2'| &\leq s \leq \text{Min}[L_2 + L_2', 2j'] \\ |L_1 - L_1'| &\leq s' \leq L_1 + L_1' \\ |s - s'| &\leq n \leq s + s'. \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Infolge der aus den Eigenschaften der $Y_{s,\tau}$ und der Clebsch-Gordan-Koeffizienten folgenden Identität

$$\left. \begin{aligned} \sum_{\tau} C(s s' n, \tau - \tau) Y_{s, -\tau}(\Theta_2, -\varphi_2) Y_{s', \tau}(\Theta_1, -\varphi_1) \\ = \sum_{\tau} (-1)^{s+s'+n} C(s s' n, \tau - \tau) Y_{s, -\tau}(\Theta_2, \varphi_2) Y_{s', \tau}(\Theta_1, \varphi_1) \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

sowie der Symmetrierelation (11) gilt bei nichtverschwindenden $f_n(j)$ ungerader Ordnung Zeitumkehrinvarianz genau dann, wenn die durch

$$\bar{B} = \frac{W\left(\Theta_1 = \frac{\pi}{2}, \Theta_2 = \frac{\pi}{2}, \varphi_2 = \frac{\pi}{4}\right) - W\left(\Theta_1 = \frac{\pi}{2}, \Theta_2 = \frac{\pi}{2}, \varphi_2 = -\frac{\pi}{4}\right)}{W\left(\Theta_1 = \frac{\pi}{2}, \Theta_2 = \frac{\pi}{2}, \varphi_2 = \frac{\pi}{4}\right) + W\left(\Theta_1 = \frac{\pi}{2}, \Theta_2 = \frac{\pi}{2}, \varphi_2 = -\frac{\pi}{4}\right)} \Bigg|_{\varphi_1=0} \quad (14)$$

definierte Asymmetrie \bar{B} bei der Messung der γ - γ -Winkelkorrelation von polarisierten Kernen verschwindet.

Die Polarisation des Kernes kann man wie in Abschnitt I durch die Messung eines vorhergehenden β -Übergangs oder der zirkularen Polarisation eines vorhergehenden γ -Übergangs herstellen. Die Korrelationsfunktionen für einen $j_a \xrightarrow{\beta} j \xrightarrow{\gamma_1} j' \xrightarrow{\gamma_2} j_b$ bzw. $j_a \xrightarrow{\gamma_0} j \xrightarrow{\gamma_1} j' \xrightarrow{\gamma_2} j_b$ Übergang erhält man dann durch Einsetzen der $f_n^\beta(j)$ (6) bzw. $f_n^\gamma(j)$ (7) in (8).

Anhang

Zur Definition der Amplituden A_L :

Für den Wechselwirkungsoperator $H_\gamma (\vec{\chi}_P^* e^{-i(\vec{k}, \vec{r})})$, der die Emission eines γ -Quants mit der zirkularen Polarisation P ($P = \pm 1$) und der

¹⁵ SHARP, W.T., J.M. KENNEDY, B.J. SEARS u. M.G. HOYLE: Tables of coefficients for angular distribution analysis. AECL No. 97 (CRT-556).

Richtung \vec{k} beschreibt, gilt die Multipolentwicklung¹²

$$H_\gamma(\vec{\chi}_P^* e^{-i(\vec{k}, \vec{r})}) = \sum_{L, M, \pi} D_{M, P}^{*L}(\vec{k}) f_{L\pi}(P) T^\dagger(L, M; \pi), \quad (\text{A.1})$$

wobei $T^\dagger(L, M; \pi)$ irreduzible Tensoroperatoren der Ordnung L und der Parität π sind und $f_{L\pi}(P)$ die Werte P bzw. $+1$ für magnetische bzw. elektrische Multipolstrahlung annimmt.

Für einen γ -Übergang $j_a \rightarrow j_b$ ist dann die Amplitude A_L derart definiert, daß

$$\left. \begin{aligned} \langle \mu_b | T^\dagger(L, M, \pi) | \mu_a \rangle &= C(j_b L j_a, \mu_b \mu_a - \mu_b) \times \\ &\times \delta_{M, \mu_a - \mu_b} (2L + 1)^{\frac{1}{2}} (-1)^L A_L \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.2})$$

gilt.

Den Herren Professor Dr. W. JENTSCHKE und Dr. W. R. THEIS danke ich für anregende Diskussionen bei der Anfertigung des Manuskripts.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

Über die Wirkung eines Doppelgitters auf die Ladungsträger einer unselbständigen Entladung

Von

HORST KESSEMEIER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 2. November 1957)

Durch Einführung eines Doppelgitters in eine ebene Entladungsstrecke ist es möglich, die Ionen einer Elektronenlawine zurückzuhalten, während die Elektronen das Gitter passieren können. Hiermit bietet sich ein Verfahren, die Elektronen-Nachlieferung durch positive Ionen zu unterdrücken und damit einzelne Lawinen hoher Trägerzahl herzustellen.

1. Problemstellung und Meßmethode

In der vorliegenden Arbeit wird die Wirkung eines Gitters, das in eine ebene Entladungsstrecke eingeführt wird, auf die Elektronen und Ionen einer Elektronenlawine studiert. Sie wurde im Hinblick auf die Möglichkeit durchgeführt, durch Abfangen der Ionen auf ihrem Weg zur Kathode deren Elektronen-Nachlieferung zu unterdrücken und dadurch eine hohe Elektronenverstärkung zu erreichen. Die durch Lichtanregung entstandenen Photonen werden vom Gitter (hier Doppelgitter) je nach den geometrischen Verhältnissen mehr oder weniger abgeschattet. Im folgenden wird vorerst die Funktion dieses Gitters in einem praktisch nachlieferungsfreien Gas (Äthylalkohol) untersucht.

Die mittlere Energie der Lawinen-Elektronen liegt in dem hier verwendeten E/p -Bereich ($100 \leq E/p \leq 150$) um mindestens eine Größenordnung über der der positiven Ionen. Während die Iontemperatur ($\approx 0,1$ eV) die thermische Energie der Gasteilchen nur wenig überschreitet, beträgt die mittlere Energie der Elektronen einige Elektronenvolt. Dieser Umstand sollte genutzt werden, um die Ladungsträger zu trennen. Zu diesem Zweck wurde eine Kombination aus zwei Gittern verwendet, deren Potentialverlauf in Fig. 1 angedeutet ist. Die Potentialsenke zwischen den beiden Gittern muß so eingerichtet werden, daß die Elektronen das Doppelgitter ohne größeren Verlust passieren, die Ionen jedoch auf Grund ihrer geringeren mittleren Energie in den Potentialtopf fallen und von den Gitterdrähten abgefangen werden.

Der Ablauf einer Elektronenlawine in einem Plattenzähler mit Gitter läßt sich wie folgt beschreiben: In Strecke 1 (Kathode—Gitter) ent-

wickelt sich aus einem durch Fremdeinstrahlung an der Kathode photoelektrisch ausgelösten Elektron die „Vorlawine“ der Trägerzahl n_v . Ihre Diffusionsbreite ist groß gegen den Abstand zweier Gitterdrähte. Die dabei entstandenen Ionen laufen zurück zur Kathode, die Elektronen treten durch das Gitter in Strecke 2 (Gitter—Anode). Dabei wird ein Teil der Elektronen von den Gitterdrähten abgefangen, so daß nur ein durch den Durchlaßkoeffizienten η_{el} des Gitters für Elektronen gekennzeichneten Bruchteil $n_v \cdot \eta_{el}$ der in Strecke 1 gebildeten Elektronen zur weiteren Verstärkung hinter dem Gitter zur Verfügung steht. Aus diesen Primärelektronen bildet sich in Strecke 2 die „Hauptlawine“ mit n_h Elektronen und Ionen. Ihre Elektronen treten in die Anode ein, die zur Kathode zurücklaufenden positiven Ionen werden zum Teil von den Gitterdrähten eingefangen, zum Teil gelangen sie durch das Gitter in Strecke 1 und geben Anlaß zu einem „reinen Ionenimpuls“, Ionenzahl n_i . Analog zu η_{el} soll ein Durchlaßkoeffizient η_i des Gitters für positive

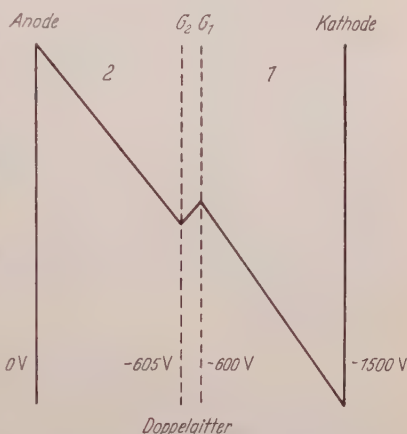


Fig. 1. Potentialverlauf in einer Entladungsstrecke mit Doppelgitter (Gegenspannung zwischen beiden Gittern, $V_{G2} - V_{G1} < 0$)

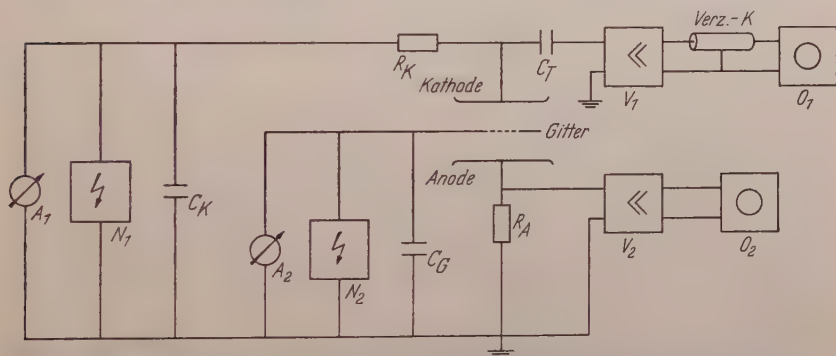


Fig. 2. Blockschaltbild der Apparatur. N_1, N_2 Hochspannungsnetzgeräte (negative Gleichspannung); A_1, A_2 mA-Meter mit Vorschaltwiderständen; C_K, C_G Kondensatoren ($2 \mu F$); R_K, R_A Arbeitswiderstände; C_T Koppelblock; V_1, V_2 Breitbandverstärker mit Kathodenfolger; O_1, O_2 Impulsoszillographen

Ionen, $\eta_i = n_i/n_h$ definiert werden, der anzeigt, welcher Prozentsatz der in Strecke 2 gebildeten Ionen durch das Gitter in Strecke 1 eintritt. Will man für eine in der Entladungsstrecke mit Gitter ablaufende Elektronenlawine die zugehörigen η_{el} und η_i -Werte bestimmen, dann müssen aus

den Oszillogrammen bei bekannter Gasverstärkung zwischen Gitter und Anode die Trägerzahlen der Vorlawine, der Hauptlawine sowie des reinen Ionenimpulses ermittelt werden.

Die Versuche wurden in Äthylalkohol durchgeführt unter den in Fig. 4 angegebenen Bedingungen. Um den Ablauf der Lawine in den durch das Gitter getrennten Strecken 1 und 2 gesondert zu studieren, wurden ihre Stromimpulse sowohl an der Kathode als auch an der Anode abgegriffen, getrennt verstärkt und auf zwei Oszillographen beobachtet (s. Fig. 2). Die beobachteten Impulse geben Auskunft über die Trägerzahlen der Vor- und Hauptlawine sowie des Ionenimpulses, und zwar ist die Ionenzahl n der Lawine bei geeigneter Wahl der Zeitkonstante des Entladungskreises zur Impulsamplitude und zur Impulsdauer direkt proportional. Daraus lassen sich die Durchlaßkoeffizienten η_{el} und η_i bestimmen¹.

2. Diskussion der Ergebnisse

a) *Gestalt der Oszillogramme.* Als Beispiel zeigt Fig. 3, wie empfindlich das Doppelgitter den Ionen- und Elektronendurchgang steuert. Der obere Impuls ist die zwischen Gitter G_2 und Anode ablaufende Hauptlawine, der untere die zwischen Kathode und Gitter G_1 ablaufende Vorlawine zusammen mit dem reinen Ionenimpuls. Die Aufnahmen lassen von positiver zu negativer Spannungsdifferenz $V_{G_2} - V_{G_1}$ zwischen beiden Gittern ein rasches Abklingen der reinen Ionenimpulse erkennen, was gleichbedeutend ist mit der stetigen Abnahme von η_i . Gleichzeitig damit wird der Ionenimpuls immer stärker auseinandergezogen und verzögert. Die Ursache dafür ist die schrittweise verringerte Feldstärke in dem Raum zwischen Gitter 2 und Gitter 1, wodurch die Driftgeschwindigkeit der positiven Ionen abnimmt. Bereits für $V_{G_2} - V_{G_1} = 0$ Volt erhebt sich der Ionenimpuls kaum noch über die Nulllinie, d.h. liegen beide Gitter auf der gleichen Spannung, dann werden innerhalb der Nachweiseempfindlichkeit der Apparatur nahezu alle zwischen Gitter 2 und Anode gebildeten Ionen durch das Doppelgitter abgefangen ($\eta_i < 1\%$). Im letzten Oszillogramm ist die Gegenspannung so weit erhöht, daß auch die Elektronenzahl hinter dem Gitter und damit die Amplitude der Hauptlawine reduziert werden.

b) *Durchlaßkoeffizienten.* In Fig. 4 sind die η_{el} - und η_i -Werte in Abhängigkeit von der Spannungsdifferenz $V_{G_2} - V_{G_1}$ zwischen den beiden Gittern bei jeweils fester Kathoden- und Doppelgitterspannung aufgetragen. Als Doppelgitterspannung V^* wird dabei willkürlich die Spannung definiert, um die die an Gitter 2 liegende Spannung von der Äquipotentialspannung dieses Gitters abweicht. Die Figur zeigt, daß

¹ Für Details der Theorie und der Auswertung s. H. KESSEMEIER, Diplomarbeit, Universität Hamburg 1957.

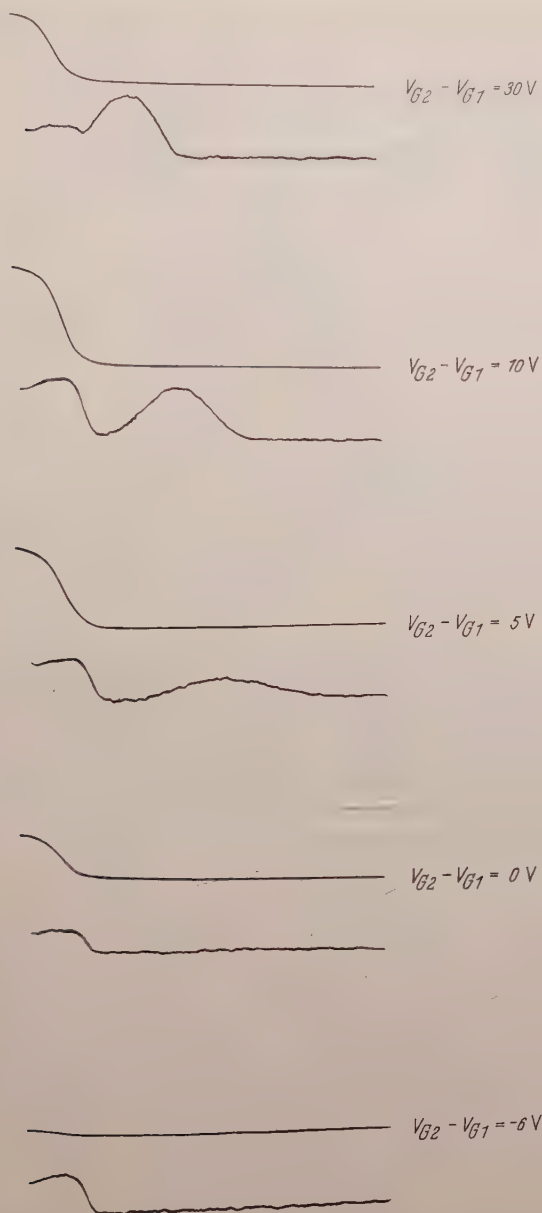


Fig. 3. Steuerwirkung des Doppelgitters auf den Ionen- und Elektronendurchgang bei Änderung der Spannung zwischen den Gittern und fester Kathoden- und Doppelgitterspannung. Der obere Strahl beschreibt den an der Anode, der untere den an der Kathode abgegriffenen Impuls. Die Empfindlichkeiten verhalten sich im oberen und unteren Oszillogramm wie 1:10. In den Figuren entspricht 1 cm etwa 14 μsec . Trägerzahl der Hauptlawine etwa 10^7

bei Gegenspannungen, bei denen noch eine ausreichende Zahl von Primärelektronen hinter dem Doppelgitter zur Verfügung steht, die Gitterkombination den Ionendurchgang sperrt. Erst bei weiterer Steigerung der Gegenspannung werden auch die Elektronen in immer stärkerem

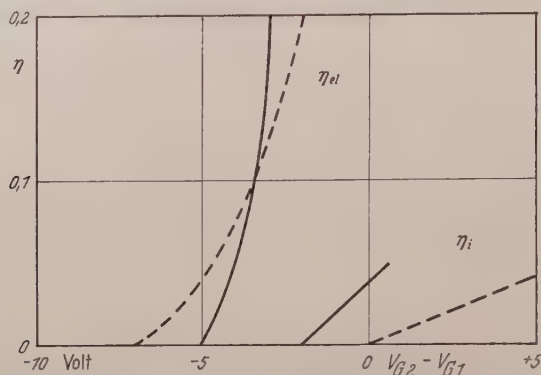


Fig. 4. Durchlaßkoeffizienten η_{el} , η_i in Abhängigkeit von der Spannungsdifferenz $V_{G2} - V_{G1}$ am Doppelgitter. Abstände: Kathode—Gitter 1 0,85 cm; Gitter 1—Gitter 2 0,05 cm; Gitter 2—Anode 0,45 cm. Gasfüllung: 7 Torr C_2H_5OH . — Gittertyp: Drahtstärke 10 μ , Drahtabstand 110 μ . Kathodenspannung = 1260 V, Gitterspannung $V^* = 0$ V. --- Gittertyp: Drahtstärke 45 μ , Drahtabstand 165 μ . Kathodenspannung = 1350 V, Gitterspannung $V^* = 75$ V

Maße von den Gitterdrähten abgefangen. Damit ist die Methode zur Lösung der eingangs gestellten Aufgabe, die Ionen einer Elektronenlawine am Rücklauf zur Kathode zu hindern, brauchbar.

Die vorliegende Arbeit ist ein Teil einer Diplomarbeit, die im Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg auf Anregung von Herrn Professor Dr. H. RAETHER ausgeführt wurde.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Münster i. Westf.

Messungen des Hall-Effektes an ferromagnetischen Nickelschichten

Von

LUDWIG REIMER

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 6. November 1957)

Es wird über Messungen des Hall-Effektes an aufgedampften Nickelschichten in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Temperatur der Glasunterlage berichtet. Den Messungen wird der ferromagnetische und nichtferromagnetische Anteil des Hall-Effektes entnommen. Die Schichtdickenabhängigkeit dieser Größen sowie der Sättigungsfeldstärke wird qualitativ diskutiert.

Einleitung

Zur Untersuchung der magnetischen Eigenschaften dünner Schichten wurden vom Verfasser in früheren Arbeiten folgende Meßverfahren herangezogen: Ballistische Meßmethoden^{1,2,3}, elektrische Widerstandsänderung im Magnetfeld⁴ und Faraday-Effekt^{5,6}. Als weiteres Untersuchungsverfahren soll in der vorliegenden Arbeit über Messungen des Hall-Effektes an aufgedampften Nickelschichten berichtet werden. Der Hall-Effekt kann bis herunter zu sehr dünnen Schichten von etwa 20 Å Dicke gemessen werden, so daß man aus der Hall-Spannung Rückschlüsse auf die magnetischen Eigenschaften dieser Schichten ziehen kann. Bei allen oben angeführten Arbeiten wurde stets eine Längsmagnetisierung in Schichtebene angelegt, um als wichtige Kenngröße die Koerzitivkraft zu ermitteln, welche auf der Basis der Eindomänentheorie diskutiert wurde. Beim Hall-Effekt ist man auf Senkrechtmagnetisierung angewiesen und kann daher keine Messung der Koerzitivkraft durchführen. Dafür ermöglicht dies Untersuchungsverfahren Aufschlüsse anderer Art über die magnetischen Eigenschaften der Schichten.

¹ REIMER, L.: Z. Naturforsch. **10a**, 1031 (1955).

² REIMER, L.: Z. Naturforsch. **11a**, 649 (1956).

³ REIMER, L.: Z. Naturforsch. **12a**, 550 (1957).

⁴ REIMER, L.: Z. Naturforsch. **12a**, 558 (1957).

⁵ REIMER, L.: Z. Naturforsch. **11a**, 611 (1956).

⁶ REIMER, L.: Z. Physik **148**, 527 (1957).

Nach Untersuchungen von PUGH, ROSTOCKER und SCHINDLER⁷ kann man nämlich die Hall-Spannung U_H in Ferromagnetika durch einen zweigliedrigen Ausdruck beschreiben:

$$U_H \cdot \frac{d}{i} = R_0 H + R_1 J, \quad (1)$$

wobei i die Stromstärke, d die Probendicke (Schichtdicke), H das von außen angelegte Feld und J die Magnetisierung der Probe bedeuten. Das Entscheidende an diesem Zusammenhang ist, daß man die Hall-Spannung U_H nicht einfach proportional zur Induktion $B = H + 4\pi J$ ansetzen kann, sondern daß der Hall-Koeffizient $R_0 \ll R_1/4\pi$ ist. Während man aus dem unmagnetischen Anteil des Hall-Effektes ($R_0 H$) Rückschlüsse auf die Bandstruktur der ferromagnetischen Metalle ziehen kann, ist eine vollständige Theorie des ferromagnetischen Anteils ($R_1 J$) noch nicht vorhanden⁸.

Da man zur Beobachtung des Hall-Effektes senkrecht zur ebenen Probe magnetisieren muß, beträgt der Entmagnetisierungsfaktor 4π , so daß bei Nickel die magnetische Sättigung erst bei einer Feldstärke $H_s = 4\pi J_s = 6300$ Oe erreicht wird. Bei den bisher vorliegenden Untersuchungen des Hall-Effektes an ferromagnetischen dünnen Schichten von STEINBERG⁹ und PEACOCK¹⁰ wurde gefunden, daß diese Sättigungsfeldstärke zuweilen unterschritten wird und daß die reduzierte Hall-Spannung $U_H d/i$ größer als diejenige des kompakten Materials ist. Es wurden bei diesen Untersuchungen aber keine systematischen Messungen des Hall-Effektes in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Schichtstruktur durchgeführt. Letztere wurde in der vorliegenden Arbeit durch die Temperatur der Glasunterlage während der Bedampfung verändert. Nach dem Abschluß unserer Untersuchungen ist ein Beitrag von COREN und JURETSCHKE¹¹ zum Hall-Effekt dünner Nickel-Aufdampfschichten erschienen, in dem aber ebenfalls nicht die Struktur der Schichten durch Variation der Aufdampfbedingungen verändert wurde.

Versuchsdurchführung

Fig. 1 zeigt die benutzten Schichtträger aus Glas, auf denen vier Goldkontakte eingebrannt waren, die nachträglich durch galvanische Verkupferung verstärkt wurden. Über diese Kontakte wurde mit einer Schablone die Nickelschicht bei einer Temperatur der Glasunterlage von 20° und 200° C (bei einigen dickeren Schichten auch bei 400° C) aufgedampft.

⁷ PUGH, E.M., N. ROSTOCKER u. A. SCHINDLER: Phys. Rev. **80**, 688 (1950).

⁸ PUGH, E.M., u. W. ROSTOCKER: Rev. Mod. Phys. **25**, 151 (1953).

⁹ STEINBERG, J.C.: Phys. Rev. **21**, 22 (1923).

¹⁰ PEACOCK, H.B.: Phys. Rev. **27**, 474 (1926).

¹¹ COREN, R., u. H.J. JURETSCHKE: J. Appl. Phys. **28**, 806 (1957).

Die Stromzuführung erfolgte durch angedrückte Kontaktfedern, während für die Ableitung der Hall-Spannung Drähte angelötet wurden. Die Bedampfung der Proben bei verschiedenen Trägertemperaturen erfolgte gleichzeitig. Die Schichtdicke wurde bei den dicken Schichten (Schichtdicke größer als 1000 \AA) interferometrisch, bei mittleren Schichtdicken

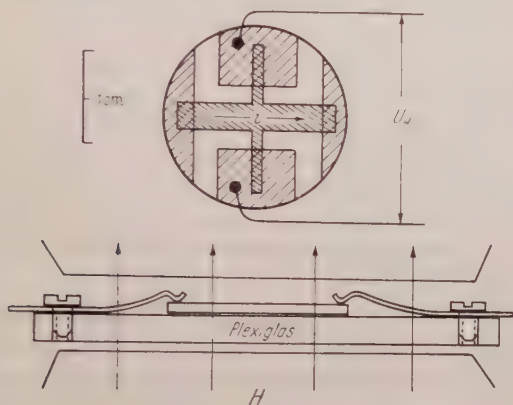


Fig. 1. Probenform und -halterung zur Messung des Hall-Effektes an Nickelaufdampfschichten

aus der Lichtdurchlässigkeit und bei Schichten dünner als 100 \AA aus der Elektronenabsorption im Elektronenmikroskop¹² bestimmt. Zur Messung der Hall-Spannung wurde das Feld kommutiert.

Meßergebnisse und Diskussion

Der Einfluß der Herstellungsbedingungen (Variation der Trägertemperatur während des Aufdampfens) soll in Fig. 2 an 450 \AA dicken Schichten demonstriert werden. Man erkennt, daß die nach (1) reduzierte Hall-Spannung bei der auf kalter Unterlage aufgedampften Schicht wesentlich größer ist, als bei der auf 400°C heißer Unterlage kondensierten Schicht und daß letztere auch noch nicht die Daten des kompakten Materials (nach Messungen von SMITH¹³) bei dieser Schichtdicke erreicht. Fig. 3 zeigt die reduzierte Hall-Spannung bei gleicher Aufdampftemperatur von 200°C aber für verschiedene Schichtdicken. Zur Diskussion dieser Meßergebnisse kann man den Kurven folgende Größen entnehmen:

1. Aus der Steigung der Geraden bei sehr hohen Feldstärken die Konstante R_0 des nichtferromagnetischen Anteils der Hall-Spannung (Fig. 4), 2. aus dem Ordinatenabschnitt, der sich durch Extrapolation

¹² REIMER, L.: Z. angew. Phys. **9**, 34 (1957).

¹³ SMITH, A.W.: Phys. Rev. **30**, 1 (1910).

des linearen Anstiegs bei hohen Feldstärken ergibt, die Größe $R_1 J_s$ (Fig. 5). (Es ist bewußt darauf verzichtet, R_1 alleine zu berechnen, da

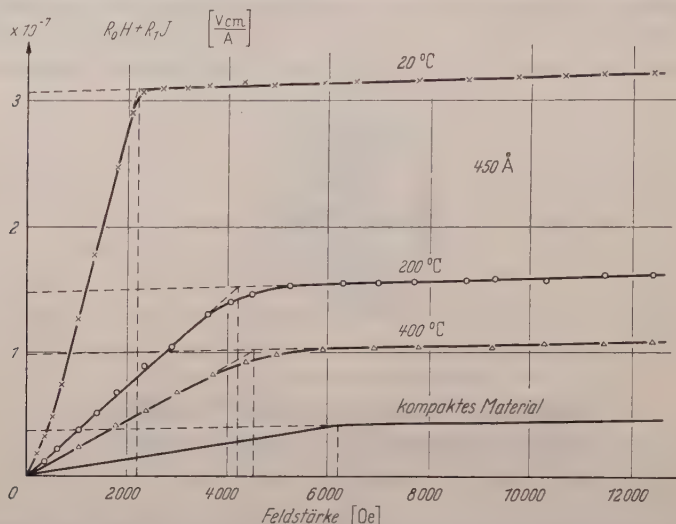


Fig. 2. Der Einfluß der Trägertemperatur während des Aufdampfens auf den Hall-Effekt einer 450 Å dünnen Nickelschicht. Zum Vergleich sind die Werte an kompaktem Material nach Messungen von SMITH¹⁸ eingezeichnet

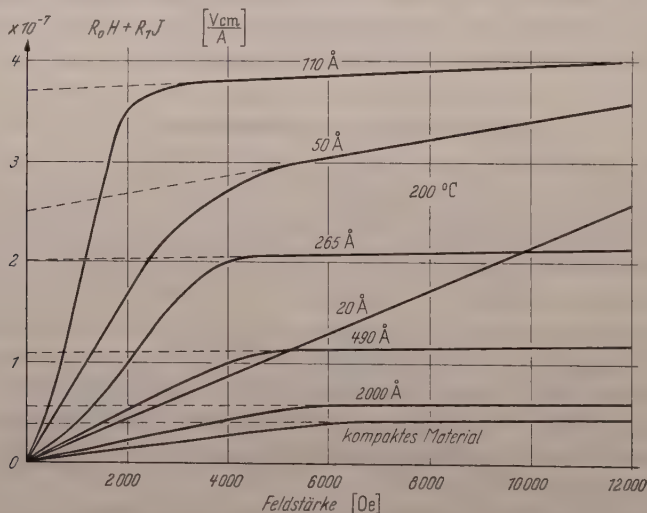


Fig. 3. Der Einfluß der Schichtdicke auf den Hall-Effekt dünner Nickelschichten bei gleicher Trägertemperatur von 200 °C

unterhalb Schichtdicken von 100 Å die Sättigungsmagnetisierung dünner Schichten sehr stark abnimmt^{14, 4} und 3. die Sättigungsfeldstärke H_s

¹⁴ KLEIN, M. J., u. R. S. SMITH: Phys. Rev. **81**, 378 (1951).

des Hall-Effektes (Fig. 6) als Feldstärke, bei der sich die geradlinige Verlängerung des ferromagnetischen Anstiegs der Hall-Spannung mit der rückwärtigen Verlängerung der Hall-Spannungswerte bei sehr hohen Feldern schneidet.

Die Konstante R_0 (Fig. 4) nimmt mit abnehmender Schichtdicke sehr stark zu und zwar bei den Schichten auf kalter Unterlage stärker als bei den auf heißer Unterlage (200°C) aufgedampften Schichten. Nach einer Theorie von SONDHEIMER¹⁵ ist eine Erhöhung dieser Hall-Konstanten bei abnehmender Schichtdicke zu erwarten, wenn die mittlere freie Weglänge der Leitungselektronen größer als die Schichtdicke wird. (Bei Nickel rechnet man mit einem Wert der mittleren freien Weglänge von annähernd 500 \AA .¹⁶) Nach dieser Theorie ist jedoch bei einer Schichtdicke von 20 \AA nur etwa der doppelte Wert der Hall-Konstanten des kompakten Materials zu erwarten, während bei dieser Schichtdicke ein Anstieg um den Faktor 30 beobachtet wurde (Fig. 4). Man muß allerdings berücksichtigen, daß noch eine Erhöhung der spontanen Magnetisierung in großen Feldern höhere Werte von R_0 hervorrufen kann, was vor allem bei den Schichten unterhalb 100 \AA zu erwarten ist, die eine Abnahme der Sättigungsmagnetisierung zeigen, welche man auch als Erniedrigung der Curie-Temperatur interpretieren kann¹⁴. Gerade bei diesen Schichtdicken setzt ein sehr steiler Anstieg von R_0 ein. Ein derartiger Anstieg von R_0 wurde auch bei Messungen am kompakten Material in der Nähe des Curie-Punktes gefunden^{13,7} und es wurde von PUGH und ROSTOCKER¹⁷ gezeigt, daß diese Zunahme von R_0 in der Nähe der Curie-Temperatur auf eine Zunahme der spontanen Magnetisierung in hohen Feldern zurückzuführen ist. Durch eine Erniedrigung der Curie-Temperatur bei sehr dünnen Schichten läßt sich demnach qualitativ der Anstieg von R_0 bei dünnen Schichten deuten, während ein eventuell vorhandener Weglängeneffekt (s. oben) völlig überdeckt wird.

Der Anstieg von $R_1 J_s$ (Fig. 5) setzt bereits bei dickeren Schichten ein als derjenige von R_0 . Nach dickeren Schichten zu wird der Wert des kompakten Materials annähernd erreicht [wie es auch bei R_0 (Fig. 4) der Fall war]. Nach den Auswertungen der Messungen von SMITH¹³ durch PUGH, ROSTOCKER und SCHINDLER⁷ ist die Konstante R_1 sehr stark temperaturabhängig und steigt bis zum Curie-Punkt monoton an, während R_0 erst in unmittelbarer Nähe des Curie-Punktes zunimmt. Die Erniedrigung der Curie-Temperatur mit abnehmender Schichtdicke kann also nach diesen Messungen an kompaktem Material ebenfalls qualitativ

¹⁵ SONDHEIMER, E.H., u. R.W. HOFFMAN: Rev. Mod. Phys. **25**, 310 (1953).

¹⁶ CRITTENDEN, E.C., u. R.W. HOFFMAN: Rev. Mod. Phys. **25**, 310 (1953).

¹⁷ PUGH, E.M., u. N. ROSTOCKER: Phys. Rev. **82**, 125 (1951).

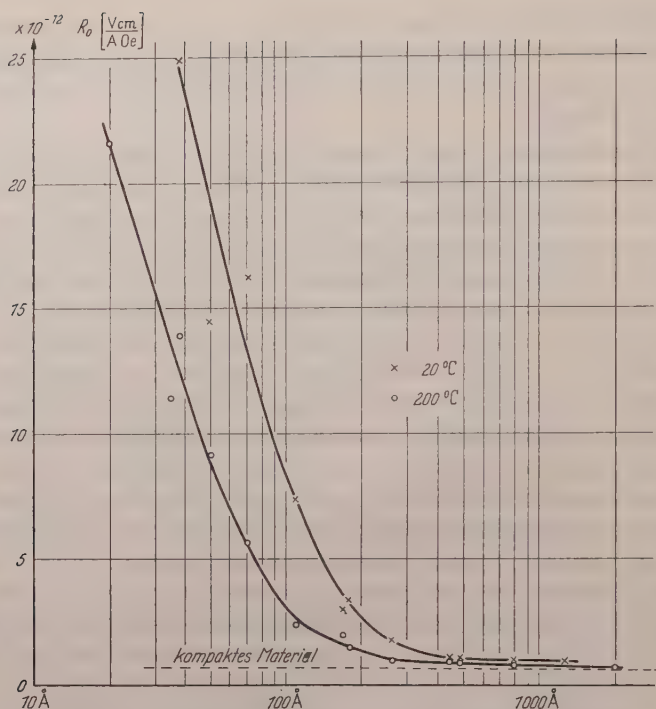


Fig. 4. Hall-Konstante R_0 des nichtferromagnetischen Anteils in Abhängigkeit von der Schichtdicke für verschiedene Trägertemperaturen während des Aufdampfens

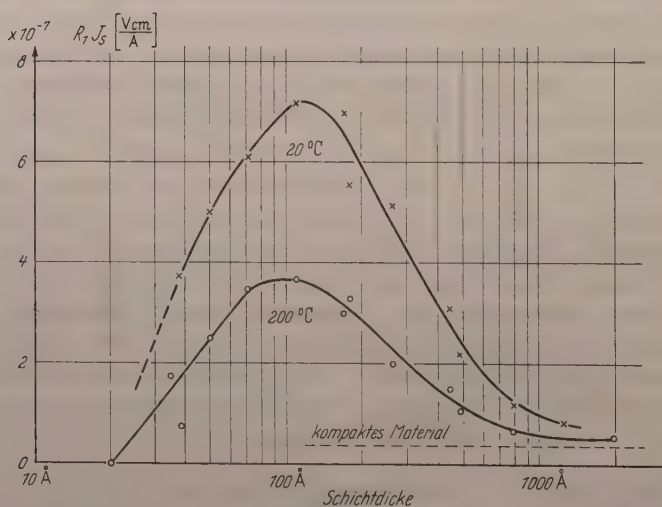


Fig. 5. Ferromagnetischer Anteil $R_1 J_s$ des Hall-Effektes in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Trägertemperatur während des Aufdampfens

den bereits bei dickeren Schichten einsetzenden Anstieg von $R_1 J_s$ gegenüber dem erst bei dünneren Schichten beginnenden Anstieg von R_0 deuten. Irgendwelche quantitativen Aussagen lassen sich aus den Meßergebnissen nicht ableiten, da aus den Figuren zu ersehen ist, daß diese Größen sehr stark von der Temperatur der Unterlage während der Bedampfung und somit von der Schichtstruktur abhängen. Nach elektronenmikroskopischen Untersuchungen an diesen Schichten beträgt die mittlere Kristallitgröße der kalt aufgedampften Schichten etwa

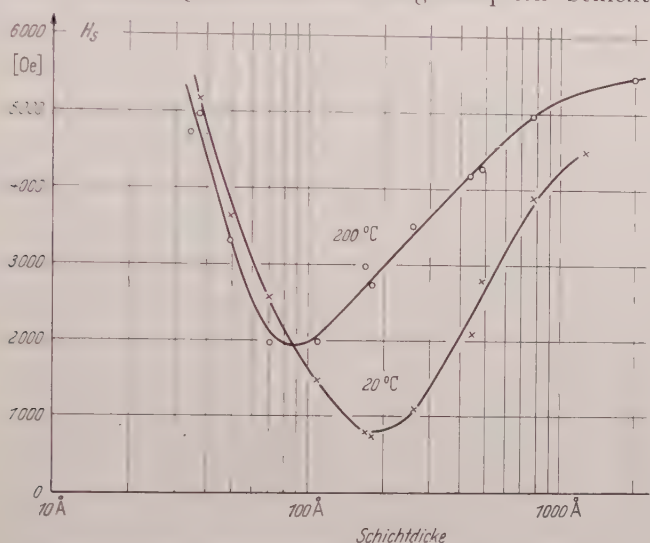


Fig. 6. Sättigungsfeldstärke des Hall-Effektes in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Trägertemperatur während des Aufdampfens

50 Å und der auf 200° C aufgeheizter Unterlage niedergeschlagenen Schichten etwa 100 Å.

Der Abfall von $R_1 J_s$ unterhalb 100 Å Schichtdicke ist auf Grund der Erniedrigung der Sättigungsmagnetisierung zu erwarten und führt zu einer kritischen Schichtdicke des Ferromagnetismus bei Zimmertemperatur von rund 20 Å. Die Meßkurve der Hall-Spannung in Fig. 3 für diese Schichtdicke zeigt ja auch keinen ferromagnetischen Anteil mehr. (Fehlen einer Sättigungserscheinung.) Im Hall-Effekt hat man also eine zusätzliche Meßmethode, um diesen bei ballistischen^{3, 15} und magnetometrischen Messungen^{18, 19} beobachteten Abfall der Sättigungsmagnetisierung zu bestätigen.

Für die Sättigungsfeldstärke H_s (Fig. 6) ergibt sich das unerwartete Resultat, daß diese Größe mit abnehmender Schichtdicke abfällt, um

¹⁸ DRIGO, A.: Nuovo Cim. **8**, 498 (1951).

¹⁹ JENSEN, H., u. A. NIELSEN: Ferromagnetism of thin nickel films. Kopenhagen: Akad. for de techn. videnskaber 1953.

bei sehr dünnen Schichten wieder sehr steil anzusteigen (am kompakten Material ist $H_s = 6300$ Oe). Dies Ergebnis ist nicht nur auf den Hall-Effekt beschränkt, denn auch die elektrische Widerstandsänderung im zur Schicht transversalen Magnetfeld zeigt bei Messungen an derselben Schicht die magnetische Sättigung bei der gleichen Feldstärke (Beispiel in Fig. 7). (Man muß bei der Widerstandsänderung beachten, daß sie proportional dem Quadrat der Magnetisierungskomponente in Feldrichtung ist und daß die Widerstandszunahme bei sehr hohen Feldern

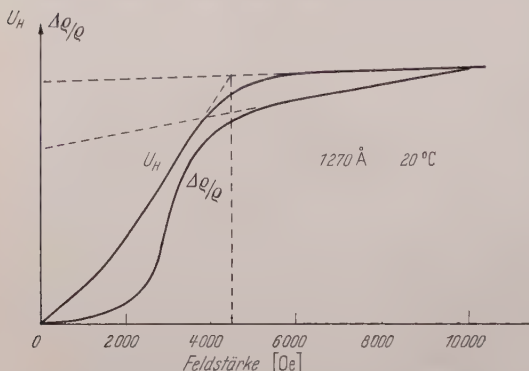


Fig. 7. Vergleich der Feldabhängigkeit des Hall-Effektes und der elektrischen Widerstandsänderung im transversalen Magnetfeld am Beispiel einer 1270 Å dicken Schicht

durch Zunahme der spontanen Magnetisierung hervorgerufen ist.)

Man könnte aus der beobachteten Erniedrigung der Sättigungsfeldstärke schließen, daß die dünnen Schichten nicht mehr zusammenhängend sind und daher einen kleineren Entmagnetisierungsfaktor als 4π aufweisen. Denkt man sich die Schicht aus kugelförmigen Haufen aufgebaut, so kann der Ent-

entmagnetisierungsfaktor nicht kleiner als derjenige einer Kugel ($4\pi/3$) werden. Da die Kugeln dicht nebeneinander liegen, wird bei einer solchen Anordnung also ein Entmagnetisierungsfaktor resultieren, der zwischen diesen beiden Werten liegt. Einmal liegen die Minimalwerte von H_s bei den Schichten auf kalter Unterlage tiefer als 2000 Oe und ferner ist ein solcher Inselaufbau der Nickelschichten nach elektronenmikroskopischen Ergebnissen nicht zu erwarten. Messungen der Elektronendurchlässigkeit des Verfassers¹² lassen sogar zumindestens bei Schichtdicken größer als 100 Å auf relativ homogene Schichten schließen. Eine zweite Erklärungsmöglichkeit dieser Diskrepanz auf der Basis der Eindomänentheorie ist dagegen wesentlich besser geeignet, die Minimalwerte der Sättigungsfeldstärke qualitativ zu erklären. Von KITTEL²⁰ wurde zum ersten Mal bemerkt, daß man aus der Sättigungsfeldstärke kleiner Teilchen ein experimentum crucis für die Eindomänentheorie entwickeln kann: In größeren Teilchen (kugelförmig) mit Multidomänenstruktur wird das entmagnetisierende Feld die Sättigung erst bei einer Feldstärke $H_s = 4\pi J_s/3$ erreichen lassen. Wenn dagegen die Teilchengröße kleiner oder gleich der Dicke einer Bloch-Wand wird, so ist es energetisch günstiger, wenn sich überhaupt keine Bloch-Wand

²⁰ KITTEL, C., J. K. GALT u. W. E. CAMPBELL: Phys. Rev. **77**, 725 (1950).

ausbildet und das ganze Teilchen aus einer einzigen ferromagnetischen Domäne besteht, in der eine Ummagnetisierung nicht mehr durch Verschieben der Bloch-Wand sondern nur noch durch Drehprozesse erfolgen kann. In einem kugelförmigen Teilchen mit Eindomänenstruktur kann jetzt die Ummagnetisierung in Feldrichtung bei einer wesentlich kleineren Sättigungsfeldstärke erfolgen, die in der Größenordnung der Koerzitivkraft des Teilchens liegt. In kugelförmigen Teilchen ist diese Koerzitivkraft nur durch die Kristallanisotropie K nach der Formel:

$$H_c = 2K/J_s \quad (2)$$

bestimmt, was bei Nickel zu maximalen Koerzitivkräften von 100 Oe führt. KITTEL²⁰ konnte experimentell an Nickelteilchen verschiedener Größe, die durch Reduktion von Nickelformiat gewonnen waren, diese theoretisch zu erwartende Erniedrigung der Sättigungsfeldstärke nachweisen.

Auf unsere Verhältnisse an dünnen Schichten übertragen heißt dies, daß bei dicken Schichten mit Multidomänenstruktur (d. h. Existenz von

Bloch-Wänden innerhalb der Schicht) $H_s = 4\pi J_s = 6300$ Oe sein soll — ein Wert, dem die Meßergebnisse an dicken Schichten durchaus zustreben. Nach früheren ballistischen Untersuchungen an aufgedampften Nickelschichten^{2,3} (allerdings auf einer Kupferunterlage) liegt in den sehr feinkristallinen Schichten ebenfalls Kristallanisotropie als alleinige Ursache für die Erhöhung der Koerzitivkraft nach (2) vor und man kann die Ergebnisse nur so deuten, daß die Einzelkristallite auch gleichzeitig die Größe der Eindomänenbereiche begrenzen. Untersuchungen der Koerzitivkraft der in der vorliegenden Arbeit vermessenen Schichten auf Glasunterlage mit Hilfe der elektrischen Widerstandsänderung im longitudinalen Magnetfeld⁴ ergeben bei dünnen Schichten mit Eindomänenstruktur ebenfalls Koerzitivkräfte kleiner als 100 Oe (Fig. 8). Der Anstieg der Koerzitivkraft nach größeren Schichtdicken hin bei den auf kalter Unterlage aufgedampften Schichten ist auf die Ausbildung innerer Spannungen zurückzuführen. Da die Eindomänenbereiche innerhalb der Schicht eng beieinander liegen, wird durch gegenseitige Koppelung über Streufelder die Sättigungsfeldstärke etwas höher zwischen

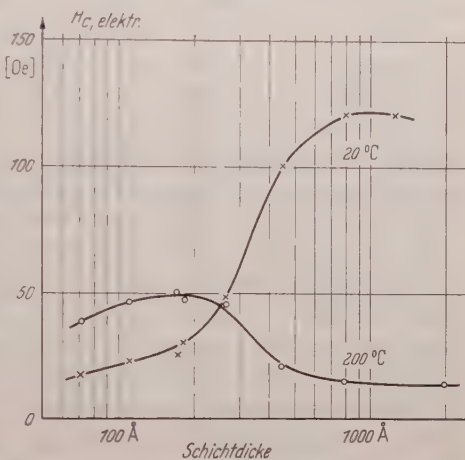


Fig. 8. Messungen der Koerzitivkraft in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Trägertemperatur während des Aufdampfens nach der Methode der elektrischen Widerstandsänderung im longitudinalen Magnetfeld

rund 100 Oe und dem Maximalwert von 6300 Oe liegen. Man hat demnach, wenn diese Deutung der Versuchsergebnisse zutrifft, in dem Abfall der Sättigungsfeldstärke ein Kriterium für das Einsetzen der Eindomänenstruktur. Insbesondere ergibt sich aus Fig. 6, daß offenbar bei den kalt aufgedampften Schichten, die aus wesentlich kleineren Kristalliten aufgebaut sind, die Eindomänenstruktur bereits bei etwas größeren Schichtdicken einsetzt als bei den auf 200° C heißen Trägern niederschlagenen Schichten.

Es wäre jetzt noch der erneute Anstieg der Sättigungsfeldstärke bei sehr dünnen Schichten zu deuten. Alle bisherigen Messungen der Magnetisierungskurve an Eisen- und Nickelschichten^{4, 6, 21} mit Schichtdicken kleiner als 100 Å lassen neben der Erniedrigung der Sättigungsmagnetisierung noch eine Abnahme der Hystereseverluste erkennen. Es nimmt die relative Remanenz J_R/J_s ab und die Sättigung wird erst bei höheren Feldstärken erreicht. Nach einer Theorie von NÉEL²² könnte dies eine Folge von thermisch induzierten Richtungsschwankungen der Magnetisierungsvektoren sein, die erst bei Schichtdicken (oder Teilchengrößen) kleiner als 100 Å einsetzen soll und zu einer „quasiparamagnetischen“ Form der Magnetisierungskurve führt. Dies ist um so ausgeprägter, je dünner die Schicht wird, bis schließlich bei einer 20 Å dünnen Schicht (bei Zimmertemperatur unmagnetisch) die technisch erreichbaren Feldstärken nicht mehr ausreichen, um die Schicht magnetisch zu sättigen. (Übergang zum vollkommenen Paramagnetismus.)

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Meßergebnisse des Hall-Effektes an dünnen Nickelschichten für eine quantitative Diskussion ungeeignet sind, da die Abhängigkeit von der Schichtstruktur nicht genau zu erfassen ist. Neben der verschiedenen Kristallitgröße bei Schichten mit geheizter und ungeheizter Unterlage können noch zahlreiche andere Parameter den Hall-Effekt beeinflussen (z.B. innere Spannungen innerhalb der Schicht, eventuelle Änderungen der Bandstruktur usw.). Daher konnte nur der Verlauf der Hall-Konstanten in Abhängigkeit von der Schichtdicke qualitativ auf Grund der Temperaturabhängigkeit dieser Größen am kompakten Material nach einer Zusammenstellung von PUGH, ROSTOCKER und SCHINDLER⁷ gedeutet werden, wenn man die Erniedrigung der Curie-Temperatur mit abnehmender Schichtdicke dadurch berücksichtigt, daß man das Verhältnis der Zimmertemperatur zur jeweiligen Curie-Temperatur betrachtet.

Es sind Untersuchungen in Vorbereitung, an den Nickelschichten die vollständige Temperaturabhängigkeit des Hall-Effektes zu messen, um nähere Aussagen über die Änderung der Hall-Konstanten R_0 und R_1 bei dünnen Schichten zu gewinnen.

²¹ REIMER, L.: Z. Geophys. (im Druck).

²² NÉEL, L.: Rev. Mod. Phys. **25**, 293 (1953).

From the Department of Physics, Indian Institute of Science, Bangalore-3

Ultra-violet bands of mercury chloride

By

V. G. KRISHNAMURTHY

With 1 Figure in the text

(Eingegangen am 7. Oktober 1957)

The Ultra violet bands of mercury chloride have been excited in uncondensed discharge and photographed with a quartz Littrow Spectrograph. The Class II system between λ 2900 to 2700 suggested by Wieland as due to the triatomic molecule has been studied in detail. In addition to the bands already recorded by previous investigators, a number of new bands has been recorded in the present investigation. A new vibrational analysis of these bands is given. The entire bands are ascribed to the longer wavelength component of ${}^2\Pi - {}^2\Sigma$, the other component being the system in the region λ 2650 to 2400 with a ${}^2\Pi$ interval of 3335 cm^{-1} which is in keeping with the corresponding intervals obtained in the case of HgF and HgI respectively.

The following vibrational constants have been determined.

ν_e	ω'_e	ω''_e
36346 cm^{-1}	385 cm^{-1}	292.5 cm^{-1}

1. Introduction

WIELAND (1929), who studied the band spectrum of mercury chloride in the region λ 7000 to 2300 using a high frequency discharge for exciting the spectrum and a spectrograph having a maximum dispersion of 10 \AA per millimeter at λ 2500, classified the bands under three heads. The class I bands extending from λ 2650 to 2400 and degrading to the violet were analysed by him completely and were ascribed to the diatomic molecule HgCl. The class II bands likewise degraded to the violet extend from λ 2900 to 2700 and WIELAND suggested that these bands might be due to the triatomic molecule HgCl_2 because of their complexity in appearance. In a subsequent paper, he referred to a poorly established frequency of 290 cm^{-1} for these bands, but no analysis had been attempted by him. The visible system (class III) extending from λ 5700 to 3000 was at first ascribed to the triatomic molecule; but later work by the same author indicated that this system was also due to the diatomic molecule HgCl.

CORNELL (1938) later investigated the mercury chloride bands between λ 3200 to 2000 under much higher dispersion and the first two systems were obtained by him. The vibrational constants derived by him for this system agreed with those of WIELAND. The second system

which was supposed by WIELAND to be due to the triatomic molecule HgCl_2 was ascribed by CORNELL to the diatomic molecule HgCl . This system as photographed by CORNELL consisted of two well developed sequences (0, 0) and (1, 0) and the vibrational constants obtained by him for this system did not show any level in common with the other band system of HgCl occurring in the shorter wavelengths region.

The bands analysed by CORNELL were arranged in very close sequences of headless bands. But what he had taken as the diagonal members of each sequence are in fact the rotational lines in a single vibrational band, which is rather incorrect. Further, the published photograph of CORNELL shows some intense bands which had not been analysed, nor even measured by him.

Later, the band system in the region λ 2900 to 2700 had been studied by SASTRY (1941). The assignment of this system to the diatomic molecule HgCl and the vibrational analysis suggested by CORNELL had been confirmed by him. SASTRY extended CORNELL's Q sequences of heads, designated them as Q_1 heads and arranged the additional bands that he measured into Q_2 sequences of the same system, giving an electronic doublet separation of 90 cm^{-1} . But what SASTRY had taken as the electronic doublet separation is the average separation between two vibrational bands in a sequence. Like CORNELL, he also did not take into consideration some of the intense bands appearing in the photograph reproduced by him.

In view of these, a reinvestigation of the band spectrum of mercury chloride seemed desirable and the results obtained are given below:

2. Experimental

The bands are excited in an ordinary H shaped pyrex discharge tube about 12 cm by 1.5 cm diameter, containing mercury chloride in a small side bulb which could be heated, if necessary. An uncondensed discharge from a half Kilowatt transformer was passed between the electrodes. Continuous evacuation with a cenco hyvac pump was necessary. The discharge was bright green and could be maintained for any length of time with just occasional heating of the mercury chloride container. The spectrum was excited using three different samples of extra pure mercury chloride supplied by B.D.H., Merck, and Kahlbaum. Photographs were taken with a Hilger medium and a large quartz Littrow spectrographs, the latter having a dispersion of 3.5 \AA/mm in the region investigated. The measurements made by a Hilger measuring micrometer were the average of several independent settings on different plates. Iron arc lines were used as standards for determining the wavelengths.

3. Description of the spectrum

A reproduction of the spectrum is given on plate. The bands are rather diffuse and broad and some are headless. The bands are violet degraded and some are double headed. Some of the intense bands show rotational structure.

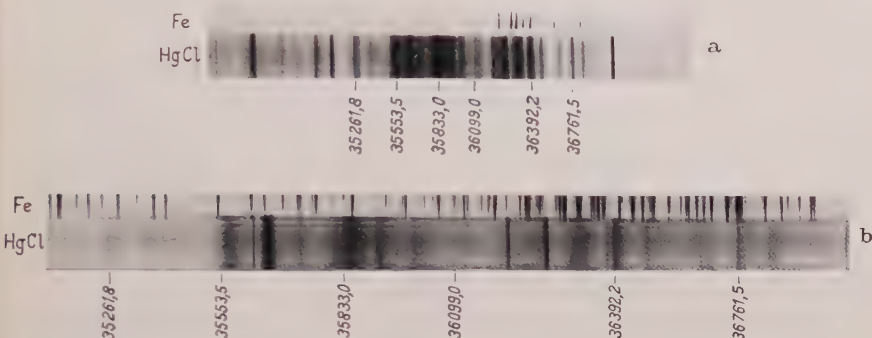


Fig. 1 a u. b. HgCl bands. a Low dispersion, b High dispersion

4. Results

The wave numbers and intensity data of the bands of this system are given in Table 1. The last column gives the assignment.

Table 1. *HgCl Bands*

Wave number	Intensity	Classification (v' , v'')	Wave number	Intensity	Classification (v' , v'')
34319.4	2	1, 9	36003.7	4	2, 4
398.0	2	2, 10	099.0	3 <i>d</i>	0, 1
432.3	2	0, 7	198.3	3 <i>d</i>	1, 2
477.4	3	3, 11	302.7	3 <i>d</i>	2, 3
574.6	2	1, 8	378.0	3	0, 0 (<i>P</i>)
684.4	2	2, 9	392.2	4	0, 0
704.2	2	0, 6	459.9	5	1, 1 (<i>P</i>)
746.5	3	3, 10	476.7	6	1, 1
836.2	3	1, 7	558.3	4	2, 2
978.4	3	0, 5	658.2	2	3, 3
35097.8	3	1, 6	738.5	4	1, 0 (<i>P</i>)
191.0	3	2, 7	761.5	5	1, 0
261.8	3	0, 4	837.3	4	2, 1
354.1	2	1, 5	934.4	2	3, 2
458.1	3	2, 6	37033.4	3	4, 3
540.9	4	0, 3 (<i>P</i>)	116.1	2	2, 0
553.5	5	0, 3	203.1	2	3, 1
635.9	4	1, 4	303.1	2	4, 2
732.8	4	2, 5	388.2	2	5, 3
823.7	5	0, 2 (<i>P</i>)	493.3	3	3, 0
833.0	6	0, 2	589.9	3	4, 1
915.1	4	1, 3			

d = diffuse.

5. Discussion

In the present investigation, a fairly large number of new bands has been recorded, in addition to those already recorded by previous investigators. The failure of CORNELL and SASTRY to record some of the new bands reported here may probably be due to the fact that the strong OH bands appearing in their spectra in this region, might have masked the HgCl bands to some extent.

The spacing of the bands is irregular at the head of some of the sequences. This may be partly due to the presence of weak *P* branches which rapidly decrease in intensity leaving only the *Q* branches. The presence of *P* and *Q* heads observed in some of the strong bands gives the conclusive evidence for the consideration that these bands may be due to ${}^2\pi - {}^2\epsilon$ transition. This is inconsistent with the interpretation of WIELAND who attributed the weak *P* heads and the stronger *Q* heads to the isotopic molecules HgCl³⁷ and HgCl³⁵.

The spectrum in the region λ 2650 to 2900 consists of two groups of intense bands, one in the region round about λ 2740 with intense bands at λ 2747, 2740 and 2719 and the other, round about λ 2800 with intense bands at λ 2790 and 2811. In the first group, the bands at λ 2740 and 2719 had been analysed by CORNELL and SASTRY. The band at 2747 had not been analysed though it is very intense; it was not even measured by CORNELL. In the second group, none of the bands had been measured.

As remarked earlier, what CORNELL had taken as the diagonal members of each sequence are the rotational lines in a vibrational band. He had recorded only 5 sequences (0, 3), (0, 2), (0, 1), (0, 0) and (1, 0) respectively beginning with ν 35644.5, 35920.2, 36197.4, 36475.3 and 36761.8 cm⁻¹ respectively and these are considered as the vibrational bands in the present analysis.

On examining the spectrum, the first impression one gets is as if the two groups of bands belong to two different systems. But the appearance and the spacing of the bands in the two regions are almost equal. Hence the bands in the two regions may belong to a single system.

Thus two possibilities of assignment of these bands arise. The first one is to regard all the bands together as forming a single system with the (0, 0) band at 36392.2 cm⁻¹. The band heads are shown in diagonal array in Table 2.

But a somewhat abrupt increase in the intervals and intensity of the bands is observed at ν 35553.5 cm⁻¹ and 35261.8 cm⁻¹ leading to the possibility of regarding these bands as forming a different system altogether. If this is the case, then 35553.5 and 35261.8 cm⁻¹ will become the (0, 0) and (0, 1) bands of this second system, the (0, 0) band of the first system being 36392.2 cm⁻¹. The $\Delta G'(v)$ and, also, the

Table 2. *HgCl Bands*

$\frac{\nu''}{\nu}$	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
0	293.2	266.0	279.5	291.7	283.4	274.2	271.9					
	36378.0 <i>P</i>	35823.7 <i>P</i>	35540.9 <i>P</i>									
	36392.2	36099.0	35833.0	35553.5	35261.8	34978.4	34704.2	34432.3				
1	369.3	377.7	365.3	361.6	374.1	375.7	393.6	403.9				
	284.8	278.4	283.2	279.2	281.8	256.3	261.6	261.6	255.2			
	36738.5 <i>P</i>	36459.9 <i>P</i>										
	36761.5	36476.7	36198.3	35915.1	35635.9	35354.1	35097.8	34836.2	34574.6	34319.4		
2	354.6	360.6	360.0	387.6	367.8	378.7	360.3	354.8		365.0		
	278.8	279.0	255.6	299.0	270.9	274.7	267.1			286.4		
	37116.1	36837.3	36558.3	36302.7	36003.7	35732.8	35458.1	35191.0		34684.4	34398.0	
3	377.2	365.8	376.1	355.5						348.5		
	291.2	268.7	276.2							269.1		
4	37493.3	37203.1	36934.4	36658.2						34746.5	34477.4	
5		386.8	368.7	375.2								
		286.8	269.7									
		37589.9	37303.1	37033.4								
				354.8								
				37388.2								

$\Delta G''(v)$ intervals of both these system are almost equal. These two systems may form the two components of a ${}^2\pi - {}^2\varepsilon$ transition with a ${}^2\pi$ interval equal to 838.7 cm^{-1} .

On the other hand, if all the bands form a single system with the (0, 0) band at 36392.2 cm^{-1} , the slight irregularity in the intervals of the bands at 35553.5 and 35261.8 cm^{-1} may be explained as due to the fact that these bands are headless and diffuse.

The values of $\Delta G(v)$ shown in Table 2 are slightly irregular, the irregularities being due to the diffuseness and headlessness of the bands. The vibrational frequency of the lower state is 292.5 cm^{-1} . Since the bands are violet degraded, ω'_e is greater than ω''_e . The average sequence difference is about 92 cm^{-1} and combining this with the value of 292.5 cm^{-1} for ω''_e , a value of $\sim 385 \text{ cm}^{-1}$ is obtained for ω'_e . Using these values, the value of ν_e is 36346 cm^{-1} .

The vibrational frequency of the lower state of this system is equal to the corresponding value (293.4 cm^{-1}) for the farther ultraviolet system and so this system may form the second component of the ${}^2\pi - {}^2\varepsilon$ transition, the first component being the system between $\lambda 2650$ to 2400 with the (0, 0) band at 39727 cm^{-1} . The ${}^2\pi$ interval between these two systems will be 3335 cm^{-1} which is in keeping with the values of 3934 and 3511 cm^{-1} established by HOWELL (1943) and by the author (1944) in the case of HgF and HgI respectively.

Isotope effect. As some of the bands show rotational structure and some of the strong bands have weak *P* heads, it is difficult to observe the isotope effect in any of the sequences. Further the diffuseness of the bands makes the detection of the faint isotope heads difficult.

Similar results have been obtained with HgBr and HgI. They will be published in due course.

The author wishes to express his grateful thanks to Professor R. S. KRISHNAN, for his kind interest and encouragement during the progress of the work. He is grateful to the Government of India, Ministry of Education for the award of National Research Fellowship.

References

- CORNELL, S.D.: Phys. Rev. **54**, 341 (1938). — HOWELL, H.G.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **182**, 95 (1943). — RAO, K.R., M.G. SASTRY and V.G. KRISHNAMURTHY: Ind. J. Phys. **18**, 323 (1944). — SASTRY, M.G.: Proc. Nat. Inst. Sci. India **7**, 351 (1941). — WIELAND, K.: Helv. phys. Acta **2**, 46, 77 (1929). — WIELAND, K.: Z. Physik **77**, 157 (1932). — Helv. phys. Acta **14**, 420 (1941).

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Freiburg i. Br.

Potentialkurven und Energieniveaus der μ -Mesonenmoleküle $(pp)\mu$, $(dp)\mu$, $(dd)\mu$

Von

H. MARSCHALL und TH. SCHMIDT

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 23. November 1957)

Es wird gezeigt, daß die Born-Oppenheimer-Näherung bei den μ -Mesonenmolekülen infolge der großen μ -Mesonenmasse zu erheblichen Fehlern führen kann. Anschließend wird ein Verfahren vorgeschlagen, das die näherungsweise Berechnung von Potentialkurven und Energieniveaus gestattet. Die Ergebnisse der Rechnung werden für die $(pp)\mu$ -, $(dp)\mu$ - und $(dd)\mu$ -Moleküle mitgeteilt.

Bei der quantitativen Beschreibung der durch μ -Mesonen katalysierten Kernprozesse vom Typ $p + d \rightarrow \text{He}^3$ ergeben sich zwei wesentliche Fragen. Das ist einmal die Beschreibung des in einem $(pd)\mu$ -Molekül ablaufenden Kernprozesses, zum anderen der Mechanismus der Mesonenmolekülbildung, der insbesondere die experimentell gefundene Bevorzugung des $(pd)\mu$ - gegenüber dem $(pp)\mu$ -Moleküls in einem Gemisch von leichtem und schwerem flüssigen Wasserstoff erklären muß. Zur Beantwortung der zweiten Frage ist offensichtlich die Kenntnis der Moleküleigenschaften von $(pp)\mu$ und $(pd)\mu$ erforderlich. Wenn man sich mit der Born-Oppenheimer-Näherung begnügt, bedeutet dies die Bestimmung der Potentialkurven, aus denen dann die Lagen des Schwingungs- und Rotationsniveaus der μ -Moleküle, Übergangswahrscheinlichkeiten usw. bestimmt werden können. Allerdings ist die Zuverlässigkeit der Born-Oppenheimer-Näherung infolge der großen μ -Mesonenmasse geringer als bei normalen Elektronenmolekülen.

Soweit uns bekannt ist, ist bisher die Potentialkurve für die μ -Moleküle durch einfache Maßstabsänderungen im Verhältnis $m_e/\mu = 1/207$ für die Längen und $\mu/m_e = 207$ für die Energien aus dem bekannten H_2^+ -Potential gewonnen worden. Wenn man in den üblichen atomaren Einheiten anstelle der Elektronenmasse m_e die Mesonenmasse μ einsetzt, gilt die H_2^+ -Potentialkurve unmittelbar für unseren Fall¹.

¹ ZELDOVICH, YA. B.: Dokl. Akad. Nauk. SSSR. **95**, 493 (1954). — ALVAREZ, L. W., H. BRADNER, F. S. CRAWFORD, jr., J. A. CRAWFORD, P. FALK-VAIRANT, M. L. GOOD, J. D. GOW, A. H. ROSENFELD, F. SOLMITZ, M. L. STEVENSON, H. K. TICHÖ u. R. D. TRIPP: UCRL-3620, Univ. of California 1956. — JACKSON, J. D.: Phys. Rev. **106**, 330 (1957). — SKYRME, T. H. R.: Phil. Mag. **2**, 910 (1957). — MARSCHALL, H., u. TH. SCHMIDT: Z. Physik **148**, 233 (1957).

Betrachten wir neben $(p\bar{p})\mu$, $(p\bar{d})\mu$ auch die $(d\bar{d})\mu$ -Moleküle, dann gilt für alle drei Fälle das gleiche Potential $W(R)$, das unter der Voraussetzung unendlich schwerer Kerne gewonnen ist. Die Unterschiede zwischen den Molekülen kommen lediglich durch die verschiedenen Kernmassen M in der radialen Wellengleichung für die Kernbewegung

$$\frac{d^2 u}{dR^2} + \left[\frac{M}{\mu} (E - W(R)) - \frac{l(l+1)}{R^2} \right] u = 0 \quad (1)$$

zustande.

Bei dem ungünstigen Massenverhältnis zwischen μ -Mesonen und Kernen ist jedoch auch ein Unterschied in den Potentialkurven zu erwarten. Es ist offensichtlich nicht möglich, diesen Einfluß im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung zu erhalten, da diese bei der Bestimmung des Potentials, d. h. der Mesonenenergie, von jeweils festgehaltenen, also unendlich schweren Kernen ausgeht. Erst diese Annahme erlaubt die Einführung einer potentiellen Energie der beiden Kerne.

Den Einfluß der endlichen Kernmassen auf das Potential zeigt deutlich die Betrachtung der Grenzfälle unendlich weit voneinander entfernt und zusammenfallender Kerne. Wenn wir uns zunächst auf $(p\bar{p})\mu$ und $(d\bar{d})\mu$ beschränken, so findet man die Energien für hinreichend großes R im Grundzustand in atomaren Einheiten zu

$$E_{p\bar{p}} = - \frac{M_p}{\mu + M_p} = - 0,8987 \quad (= - 2530 \text{ eV})$$

$$E_{d\bar{d}} = - \frac{2M_p}{\mu + 2M_p} = - 0,9467 \quad (= - 2670 \text{ eV}),$$

wobei M_p die Protonenmasse bedeutet. Im Grenzfall $R=0$ ergibt sich (unter Berücksichtigung der doppelten Kernladung)

$$E_{p\bar{p}} = - 4 \cdot \frac{2M_p}{\mu + 2M_p} = - 3,787 \quad (= - 10670 \text{ eV})$$

$$E_{d\bar{d}} = - 4 \cdot \frac{4M_p}{\mu + 4M_p} = - 3,890 \quad (= - 10960 \text{ eV}),$$

wobei in beiden Fällen dieselbe (unendlich große) Coulomb-Energie beider Kerne weggelassen ist. Diesen Zahlen entnimmt man sofort, daß der Abstand des $p\bar{p}$ -Potentials vom $d\bar{d}$ -Potential an den beiden Grenzen verschieden ist (140 bzw. 290 eV). Mithin können die beiden Potentialkurven nicht durch eine Parallelverschiebung auseinander hervorgehen, d. h. die beiden Potentiale sind wesentlich verschieden. In diesem Zusammenhang erkennt man auch, daß das durch bloße Umrechnung aus dem H_2^+ gewonnene Potential ebenfalls von den beiden eben genannten Potentialen verschieden sein muß. Da die Tiefe der für die Kernbewegung maßgebenden Potentialmulden nur rund 560 eV beträgt,

können diese Unterschiede zu erheblichen Korrekturen führen. Wie bereits betont, läßt sich der Einfluß der endlichen Kernmassen im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung in konsistenter Weise nicht berücksichtigen.

Man darf jedoch hoffen, eine brauchbare Näherung durch eine sinnvolle Interpolation zwischen den exakt bekannten Grenzfällen zu erhalten.

Wenn wir uns zunächst auf $(p p) \mu$ beschränken, so lauten die Wellengleichungen für die Mesonenbewegung in den beiden Grenzfällen

$$\Delta \psi + \frac{M_p}{\mu + M_p} \left(E_{p p} - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} \right) \psi = 0 \quad \text{für } R \rightarrow \infty \quad (2a)$$

$$\Delta \psi + \frac{M_p}{\mu - M_p} \left(E_{p p} - \frac{4}{2} \right) \psi = 0 \quad \text{mit } r_1 = r_2 = r \quad \text{für } R = 0. \quad (2b)$$

Die Interpolation muß nun darin bestehen, den Faktor vor der Klammer als Funktion von R so zu schreiben, daß die beiden Grenzfälle richtig wiedergegeben werden. Der physikalische Unterschied beider Grenzfälle besteht darin, daß für $R \rightarrow \infty$ das Meson jeweils nur vor einem Proton, für $R = 0$ immer von beiden Protonen gemeinsam festgehalten wird. Für mittlere Kernabstände liegt ein „Zwischenzustand“ zwischen diesen Grenzfällen vor. Zur näherungsweisen Charakterisierung dieses Zwischenzustandes erscheint es vernünftig, das Austauschintegral $A(R)$ zu benutzen, das als Verhältnis der Platzwechselfrequenz des Mesons zu seiner Umlauffrequenz um einen Kern gedeutet werden kann. Bei verschwindender Platzwechselfrequenz ist das Meson vorzugsweise einem der beiden Kerne zugeordnet, mit steigender Platzwechselfrequenz ist es in zunehmendem Maße beiden Kernen gleichzeitig zugeordnet.

Die einfachste Interpolationsgleichung wird daher

$$\Delta \psi + \frac{M_p}{\left(1 + \frac{A}{2}\right) \mu + M_p} \left(E_{p p} - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} \right) \psi = 0. \quad (3)$$

Wegen $A = 0$ für $R \rightarrow \infty$, $A = -1$ für $R = 0$ erhält man in den beiden Grenzfällen die Gln. (2). Analog folgt dann für $(\bar{d} \bar{d}) \mu$:

$$\Delta \psi + \frac{M_p}{\left(1 + \frac{A}{2}\right) \frac{\mu}{2} + M_p} \left(E_{\bar{d} \bar{d}} - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} \right) \psi = 0. \quad (4)$$

Das Austauschintegral entnimmt man der vereinfachten Theorie, in welcher die Mesoneneigenfunktion des Moleküls als Linearkombination der ungestörten Eigenfunktionen der getrennten Atome dargestellt wird. Für $\mu \ll M_p$ erhält man die Wellengleichung für unendliche schwere

Kerne, wie sie von TELLER und HYLLERAAS zur Bestimmung des H_2^+ -Potentials benutzt wurde². Die Lösungen für die obigen Gleichungen folgen daraus durch eine Maßstabsänderung um den Faktor vor der Klammer.

Addiert man zu diesen korrigierten Werten die Coulomb-Energie der Kerne $1/R$, so erhält man die in der Fig. 1 dargestellten Potentialkurven*.

Für das Rotationsschwingungsspektrum der Moleküle sind die von der Dissoziationsgrenze aus gemessenen Potentialmulden maßgebend.

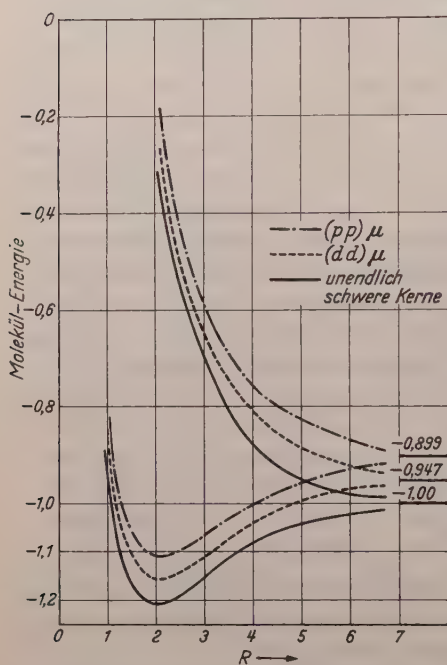


Fig. 1. Die Potentialkurven für unendlich schwere Kerne, sowie für die $(dd)\mu$ - und $(pp)\mu$ -Moleküle. Am rechten Rand sind die Dissoziationsenergien notiert; bei diesen treffen sich jeweils der obere und untere Zweig eines Systems für $R \rightarrow \infty$ (Entartung)

durch $\psi_1 + \psi_2$ (untere Zweige in Fig. 1) und $\psi_1 - \psi_2$ (obere Zweige in Fig. 1) gegeben sind. Für $R \rightarrow \infty$ tritt die eben erwähnte Entartung ein, die in Fig. 1 für jeden der drei Fälle deutlich erkennbar ist. Diese Entartung entfällt bei *ungleichen* Kernen. Im Grenzfall $R \rightarrow \infty$ ist die Eigenfunktion des stationären Zustandes entweder ψ_1 oder ψ_2 . Bei endlichem Kern-

Überraschenderweise stellt sich heraus, daß sich die korrigierten Potentialmulden nur wenig voneinander unterscheiden. Hierdurch wird nachträglich die eingangs erwähnte Bestimmung der Energierterme unter Benutzung des H_2^+ -Potentials bis zu einem gewissen Grade gerechtfertigt.

Bei der Übertragung der obigen Überlegungen auf das $(pd)\mu$ -Molekül tritt bereits bei der Betrachtung des dissoziierten Zustandes ein wesentlicher Unterschied zu den beiden bisher betrachteten Fällen auf, der durch die ungleichen Massen der beiden Kerne bedingt ist. Als Ausgangszustände zur Beschreibung des Moleküls dienen die Atomeigenfunktionen ψ_1 und ψ_2 der getrennten Kerne. Im Falle *gleicher* Kerne sind beide Zustände miteinander entartet und eine bekannte Überlegung zeigt, daß die stationären Zustände genähert

* Die Inkonsistenz der Näherung zeigt sich z. B. darin, daß sich die Bedeutung von R nicht exakt angeben läßt. Für große Kernabstände bedeutet R den Schwerpunktsabstand der getrennten Systeme.

² TELLER, E.: Z. Physik **61**, 458 (1930). — HYLLERAAS, E. A.: Z. Physik **71**, 739 (1931).

abstand treten Linearkombination $c_1 \psi_1 + c_2 \psi_2$ auf, wo c_1 und c_2 so von R abhängen müssen, daß die für $R \rightarrow \infty$ in 1 bzw. 0 übergehen*. Bei Verkleinerung des Kernabstandes geht der tiefere dissoziierte Zu-

stand $(d) \mu + p$ entsprechend dem unteren Zweig in Fig. 1 schließlich in den Zustand $1s$ des He^3 über. Der obere Zustand $(p) \mu + d$ führt entsprechend dem oberen Zweig in den Zustand $2p$ des He^3 .

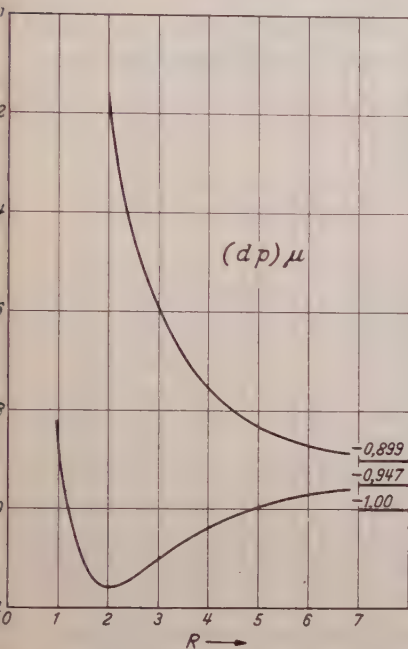


Fig. 2

Fig. 2. Die Potentialkurven für das $(d p) \mu$ -Molekül. Der obere Zweig läuft gegen die Dissoziationsenergie des Systems $(p) \mu + d$, der untere gegen die Dissoziationsenergie des Systems $(d) \mu + p$ (keine Entartung)

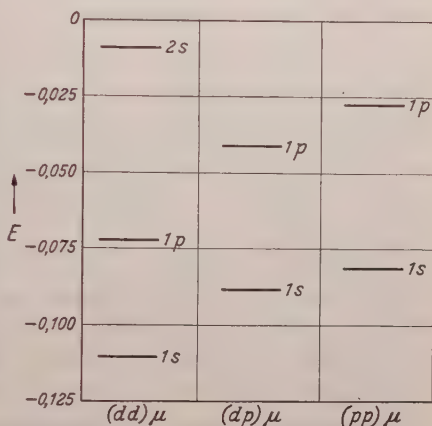


Fig. 3

Fig. 3. Die auf die Dissoziationsenergien bezogene Lage der stabilen Energieniveaus für die Mesonenmoleküle $(d d) \mu$, $(d p) \mu$ und $(p p) \mu$

Wenn man dasselbe Interpolationsverfahren wie oben anwendet, erhält man für den unteren bzw. oberen Zweig die folgenden Schrödinger-Gleichungen:

$$\Delta \psi + \left(\frac{M_p}{1 + \frac{A}{3}} \right) \frac{1}{2} + M_p \left(E_{ap} - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} \right) \psi = 0 \quad \text{für } (d) \mu + p \quad (5a)$$

$$\Delta \psi + \left(\frac{M_p}{1 + \frac{2A}{3}} \right) \frac{1}{\mu} + M_p \left(E_{pd} - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} \right) \psi = 0 \quad \text{für } (p) \mu + d. \quad (5b)$$

* Qualitativ läßt sich das am einfachsten mit dem Modell zweier ungleicher rechteckiger Potentialtöpfe übersehen. Vergrößert man den Abstand der Töpfe, so ergibt eine einfache Rechnung das eben geschilderte Verhalten. Vgl. auch EYRING, H., J. WALTER u. G. E. KIMBALL: Quantum Chemistry. New York: John Wiley 1948.

In beiden Fällen ist das bisher benutzte, für gleiche Kerne geltende Austauschintegral eingesetzt. Das ist zwar bei ungleichen Kernen nicht genau richtig, im Rahmen unserer Näherung aber sicher erlaubt. Die so berechneten Potentialkurven zeigt Fig. 2.

Als geeignetes Rechenverfahren zur Bestimmung der Schwingungs- und Rotationsniveaus der Moleküle erweist sich das WKB-Verfahren. Dabei garantiert die Ersetzung von $l(l+1)$ in der Wellengleichung (1) durch $(l+\frac{1}{2})^2$ das richtige Verhalten der Wellenfunktion für $R=0$ auch für kleine l .

Die auf diese Weise gefundenen stabilen Energieniveaus sind in Fig. 3 bzw. der Tabelle 1 angegeben.

Tabelle 1

	$(d\bar{d})\mu$	$(d\bar{p})\mu$	$(p\bar{p})\mu$
1s	— 0,009 bzw. — 25 eV	nicht stabil	nicht stabil
1p	— 0,072 bzw. — 220 eV	— 0,041 bzw. — 115 eV	— 0,027 bzw. — 75 eV
2s	— 0,110 bzw. — 300 eV	— 0,088 bzw. — 250 eV	— 0,081 bzw. — 225 eV

Die Zuverlässigkeit der erhaltenen Ergebnisse ist im wesentlichen durch die Unsicherheit der Potentialkurven, d.h. die Born-Oppenheimer-Näherung beschränkt, wobei die Unsicherheit beim $(p\bar{p})\mu$ naturgemäß am größten sein wird. Wegen der Möglichkeit, die beiden Grenzfälle exakt zu lösen, glauben wir jedoch, daß die angegebene Interpolation zu einigermaßen richtigen Werten führt. Wir möchten annehmen, daß die angegebenen Potentiale und Energieniveaus zu einer brauchbaren Abschätzung der Übergangswahrscheinlichkeiten aus dem Kontinuum benutzt werden können. Es läßt sich leicht einsehen, daß auch bei den Übergangswahrscheinlichkeiten durch das Dipolmoment ein wesentlicher Unterschied zwischen den Systemen mit gleichen und solchen mit ungleichen Kernen bestehen wird.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

Elektronennachlieferung in den Gasen N_2 , H_2 und O_2 bei niedrigen Drucken ($p d \approx 50 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$)

Von

K. J. SCHMIDT-TIEDEMANN

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 2. November 1957)

Durch oszillographische Beobachtung von Lawinen-Impulsketten werden Art und Ausbeute des Nachlieferungsmechanismus (γ -Effekt) in N_2 , O_2 und H_2 bei $p d \approx 50 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ ermittelt. In Stickstoff dominiert die Wirkung der positiven Ionen, $\gamma_i = 1,5 \cdot 10^{-6}$ (an oxydierter Cu-Kathode) bis $\gamma_i > 10^{-3}$ (an durch Ausheizen in H_2 reduzierter Cu-Kathode). Dabei treten Generationsabstände auf, die größer als die Ionenlaufzeit sind. In Wasserstoff trägt der Photoeffekt den Hauptanteil der Nachlieferung, $\gamma_p = 5 \cdot 10^{-5}$ (an oxydierter Cu-Kathode) bis $\gamma_p = 1 \cdot 10^{-6}$ (an reduzierter Cu-Kathode), $\gamma_i \approx 10^{-7}$. Sauerstoff zeigt an frisch reduzierter Cu-Kathode ein $\gamma_i \approx 10^{-7}$, was innerhalb einer Stunde auf Werte $< 10^{-10}$ zurückgeht. Im übrigen erfolgt die Nachlieferung durch Photoeffekt, $\gamma_p = 10^{-6}$ (an oxydierter Cu-Kathode). Mit oxydiertem Wolfram als Kathodenmaterial konnte die γ -Ausbeute in Sauerstoff auf einige 10^{-9} herabgedrückt werden, so daß die kritische Verstärkung für den Kanaldurchschlag erreicht wurde.

A. Einleitung

Nachdem über die oszillographische Untersuchung einzelner Elektronenlawinen und ihrer Sekundärlawinen in den Gasen N_2 , O_2 und Luft bei großen $p d$ -Werten (500 Torr \cdot cm und mehr) berichtet worden war¹), soll im folgenden die Natur der Sekundärprozesse (γ -Effekt) und die Ausbeute der verschiedenen Prozesse in den Gasen N_2 , H_2 und O_2 bei kleinen $p d$ -Werten (etwa 50 Torr \cdot cm) mittels einer hinsichtlich Signal-Rausch-Verhältnis verbesserten Anordnung² ermittelt werden.

B. Apparatur

a) *Vakuum-Anlage.* Die experimentelle Anordnung zeigt schematisch Fig. 1. Der Rezipient und die zweite Kühlfalle konnten bei 400°C ausgeheizt werden (Glas: Schott G 20). Zum Ausfrieren der Dämpfe dienten zwei Fallen mit flüssigem Sauerstoff. Der Restdruck der Anlage nach mehrstündigem Ausheizen betrug weniger als $2 \cdot 10^{-7} \text{ Torr}$. Die scheibenförmigen Elektroden von 25 mm Durchmesser sind mittels Nickelblech mit Molybdän-Durchführungen hart verlötet. Der Elektrodenabstand

¹ VOGEL, J. K., u. H. RAETHER: Z. Physik **147**, 141 (1957). — VOGEL, J. K.: Z. Physik **148**, 355 (1957).

² SCHMIDT-TIEDEMANN, K. J.: Z. angew. Phys. **9**, 454 (1957).

beträgt 5 mm, als Material wurden vakuumgeschmolzenes Kupfer (mit Beryllium desoxydiert) und Nickel sowie duktiles Wolfram (aus Blech gestanz) verwendet.

Die Anode ist in der Mitte mit einem Loch von 0,3 mm \varnothing versehen, wodurch das durch ein mittels Zwischenringe angeschmolzenes Quarzfenster eintretende UV-Licht auf die Kathode gelangt, um dort ein Primärelektron auszulösen. Die Bestrahlungsintensität wurde so eingestellt, daß einige Lawinen pro Sekunde sichtbar waren. Zur genauen

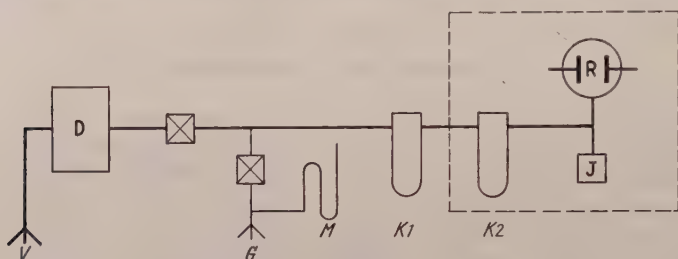


Fig. 1. Schematische Darstellung der Apparatur. *V* Vorvakuum-Anschluß, *D* Diffusionspumpe, *G* Gaseinlaß, *M* Manometer, *K* 1, *K* 2 Kühlfallen, *R* Rezipient, *J* Ionisationsmanometer, *X* Ventile; der ausheizbare Teil der Apparatur ist mit einer gerissenen Linie umgeben

Auswertung der Impulsform ist Mitteneinstrahlung unerlässlich, da am Rande der Entladungsstrecke laufende Lawinen stark verzerrte Stromimpulse aufweisen³.

Der zur Füllung der Entladungsstrecke benutzte Stickstoff wurde entweder aus Natriumazid entwickelt oder ebenso wie der Wasserstoff und der Sauerstoff aus einer Stahlbombe („Reinste Gase“ der Firma G. Gauff, Frankfurt) entnommen. Der Hersteller gibt die maximale Verunreinigung mit 0,2⁰/₁₀₀ an.

b) Elektronische Anordnung. Der Breitband-Vorverstärker wurde bereits früher² ausführlich beschrieben. An Oszillographen standen zur Verfügung: Tektronix Modell 535 mit Einschub-Verstärker 53B entsprechend $3 \cdot 10^{-8}$ sec Anstiegszeit, Bandbreite etwa 12 MHz, Schreibgeschwindigkeit etwa 10^6 m/sec, außerdem Ribet & Desjardins Modell 203 B mit $2 \cdot 10^{-8}$ sec Anstiegszeit (entsprechend etwa 18 MHz Bandbreite) und einer Schreibgeschwindigkeit von etwa $4 \cdot 10^6$ m/sec. Die Aussteuerungskurve des gesamten Systems wurde mit Rechteck-Impulsen durchgemessen und ergab eine Empfindlichkeit von 25 μ V pro 1 cm Auslenkung auf dem Schirm.

Die in die Oszillogramme einkopierten Zeitmaßstäbe entstammen beim Oszillographen 535 direkt dem geeichten Kippgenerator, der Ribet-Oszillograph wurde mit Hilfe des Meß-Senders SMLR von Rohde & Schwarz geeicht (Genauigkeit in beiden Fällen $\pm 3\%$).

³ FROMMHOLD, L.: Z. Physik **145**, 324 (1956).

C. Meßverfahren

Wie einleitend bemerkt, soll sowohl die Art der Sekundärprozesse als auch die Ausbeute dieser Effekte bestimmt werden. Die Art des Nachlieferungsprozesses wird aus dem Generationsabstand Θ innerhalb einer Lawinkette erschlossen. Bei Nachlieferung durch positive Ionen (γ_i -Effekt) ist für Θ_i etwa die Ionenlaufzeit τ_i (einige μsec) zu erwarten. Da man aus einem Oszillogramm gleichzeitig Θ_i und τ_i entnehmen kann, ist ein direkter Vergleich möglich (vgl. die Diskussion der Ergebnisse). Beim Photoeffekt als Nachlieferungsquelle ist das kleinstmögliche Θ_p die Elektronenlaufzeit $\tau_{el} \approx 5 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$. Da diese Zeit nur in Gestalt der Zeitkonstante des Elektronenanstieges, $\tau_{el}/\alpha d \approx 5 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$, in die Impulsform eingeht, ist aus Gründen mangelnder Zeitauflösung der Apparatur (≈ 3 bis $5 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$) eine direkte Messung von τ_{el} nicht möglich.

Die Ausbeute an Sekundärelektronen wird in folgender Weise ermittelt:

γ ist als Mittelwert definiert. Experimentiert man mit Einzelimpulsen, so muß der Koeffizient nach einem geeigneten statistischen Verfahren gewonnen werden, da auf Grund der Streuung der Lawinenamplitude es nicht möglich ist, zu entscheiden, ob ein, zwei oder mehrere Nachlieferungs-Elektronen gleichzeitig ausgelöst werden und die Nachfolgelawine bilden. Man kann nur feststellen, ob überhaupt Nachfolger auftreten. Wir benutzen die Wahrscheinlichkeit $w_0(n)$, daß eine Lawine der Trägerzahl n keinen Nachfolger besitzt, zur Bestimmung von γ . Für eine Lawine mit n Ionen wird, da n sehr groß ist (10^4 bis 10^7)

$$w_0 = (1 - \gamma)^n \approx e^{-\gamma n}. \quad (1)$$

Auf dem photographisch registrierten Oszillogramm kann man Lawinen in einem schmalen Intervall um die Trägerzahl n herum auslesen und w_0 durch Auszählung gewinnen. Außer diesem Verfahren wurde ein etwas vereinfachtes angewandt, indem man im Oszillographen alle Lawinen betrachtete, deren Trägerzahl n größer war als eine durch den Triggerpegel des Oszillographen vorgegebene Grenze N . Die Wahrscheinlichkeit, daß eine dieser Lawinen keinen Nachfolger besitzt, sei $W_0(N)$. Sie berechnet sich aus Gl. (1) und der Wahrscheinlichkeit $w(n)$, daß eine Lawine die Trägerzahl n erreicht⁴, $w(n) \sim e^{-n/n_0}$, $n_0 = e^{\alpha d}$ (Mittelwert), zu

$$W_0(N) = \frac{\int_N^\infty w(n) w_0(n) dn}{\int_N^\infty w(n) dn} = \frac{e^{-\gamma N}}{1 + \gamma n_0}. \quad (2)$$

⁴ WIJSMAN, R.A.: Phys. Rev. **75**, 833 (1949). — LEGLER, W.: Z. Physik **140**, 221 (1955). — FROMMHOLD, L.: Z. Physik **144**, 396 (1956).

Bei bekanntem N und αd läßt sich der Wert γ aus dem durch Auszählen bestimmten W_0 berechnen. Experimentell wurde $W_0 \approx \frac{1}{2}$ eingestellt, d.h. im Mittel besitzt jeder zweite Impuls einen Nachfolger.

Für die Bestimmung von N bzw. n ist die Kenntnis des Zusammenhangs zwischen Impulsamplitude und Trägerzahl n erforderlich. Nimmt man an, daß die Spannung über dem Arbeitswiderstand R_E der Entladungsstrecke unverzerrt oszillographiert wird, so wird nach Ablauf der Elektronenkomponente und der RC -Ausgleichsvorgänge der Strom $i_+ = \frac{n\varepsilon}{\tau_i}$ der positiven Ionen (τ_i Ionenlaufzeit) die Spannung über R_E aufrechterhalten, d.h. es ergibt sich im Oszillogramm ein „Plateau“ der Spannung $U_+ = i_+ R_E$. Ist $\tau_E = R_E C_E$ die Zeitkonstante des Entladungskreises, so folgt

$$n = \frac{U_+ C_E}{\varepsilon} \cdot \frac{\tau_i}{\tau_E} \quad (3)$$

Diese Beziehung gilt unabhängig von statistischen Schwankungen der Gasverstärkung und der eingestellten Impulsform. (Voraussetzung ist lediglich ein „Plateau“ von genügender Länge und konstante Ionen-geschwindigkeit.)

Für die vorliegenden Untersuchungen wurde eine Verstärker-Schaltung verwendet², bei der der Impuls zum Zwecke der Rauschunterdrückung im Eingang integriert wird ($\tau_E = \infty$). Gl. (3) gilt dann ebenfalls in der Form

$$n = \frac{U_+ C_E}{\varepsilon} \cdot \frac{\tau_i}{\tau_D} \quad (3a)$$

wobei τ_D die Impulsformungs-Zeitkonstante bedeutet.

Die durch das Eingangsrauschen des Verstärkers festgelegte kleinste nachweisbare Trägerzahl liegt in der Größenordnung $2 \cdot 10^3$ bis 10^4 , siehe². Damit wird die obere Grenze der γ -Bestimmung etwa zu $\gamma = 10^{-3}$ bis 10^{-4} festgelegt, s. Tabelle 1.

Aus einer allgemeinen Theorie des Lawinen-Impulses⁵ gewinnt man eine Abschätzung der mittleren Gasverstärkung $e^{\alpha d}$ entsprechend der Beziehung

$$\alpha d = \frac{\tau_i}{\tau_0}, \quad (4)$$

wobei τ_0 diejenige Impulsformungs- (bzw. Eingangs-) Zeitkonstante ist, die den Lawinenimpuls auf Rechteckform bringt.

Um abzuschätzen, wie stark etwaige Meßfehler für W_0 , $e^{\alpha d}$ und N in das Endergebnis eingehen, wurde die Gl. (2) numerisch gelöst, siehe Tabelle 1.

⁵ SCHMIDT, K. J.: Z. Physik **139**, 251 (1954).

γN hängt von W_0 etwa reziprok ab und schwankt etwa um einen Faktor 2, wenn $N \cdot e^{-\alpha d}$ zwischen 1 und ∞ variiert. Die Meßunsicherheit von γ liegt in der Größenordnung 20%.

Tabelle 1

W_0	0,1			0,5			0,9		
$N \cdot e^{-\alpha d}$	1	3	∞	1	3	∞	1	3	∞
γN	1,4	1,8	2,3	0,39	0,53	0,69	0,05	0,09	0,11

Liegen Photoeffekt und Auslösung durch positive Ionen gleichzeitig vor, so kann man ihr Verhältnis abschätzen. Für unsere Anwendungen (Stickstoff) ist der Fall von Interesse, daß $\gamma_p \ll \gamma_i$. Dann ist die Wahrscheinlichkeit w_p , daß eine Lawine der Trägerzahl n einen Nachfolger durch Photoeffekt erzeugt, gleich

$$w_p = 1 - e^{-\gamma_p n} \approx \gamma_p n. \quad (5)$$

Entnimmt man n aus Gl. (1), so folgt

$$\frac{\gamma_p}{\gamma_i} = \frac{w_p}{\ln w_0}. \quad (6)$$

Zahlenbeispiel für die Auswertung

Stickstoff, $p_0 d = 45,5$ T cm; $E/p_0 = 72$ V/cm T.

Technische Cu-Kathode.

Berechnung der Trägerzahl nach Gl. (3a):

$\tau_D = 1,5 \cdot 10^{-7}$ sec, $\tau_i = 3,0 \cdot 10^{-8}$ sec, $C_E = 12$ pF,

$U_+ = 200$ μ V ergibt $n = 3 \cdot 10^5$.

Eine statistische Auswertung ergab, daß 18% der Impulse dieser Höhe keinen Nachfolger besitzen. Folglich berechnet sich nach Gl. (1) mit $w_0 = 0,18$, $n = 3 \cdot 10^5$ der Koeffizient γ_i zu $0,56 \cdot 10^{-5}$ (s. Tabelle 4, Zeile I).

Die Ausbeute der Elektronennachlieferung ist stark von der Kathodenbeschaffenheit abhängig. Da eine eindeutige Festlegung des Zustandes der Kathodenoberfläche bei bisher durchgeführten Experimenten nicht möglich war, kann man beim Vergleich der Meßwerte verschiedener Autoren nur eine größenordnungsmäßige Übereinstimmung erwarten. Messungen des γ_i -Effektes mit Ionenstrahlen an definierten Oberflächen (Präparation im Höchstvakuum) sind bisher nur für Ionen von einigen eV Energie durchgeführt worden⁶, während wir es hier mit der Ausbeute von Ionen thermischer Geschwindigkeit zu tun haben.

In den vorliegenden Untersuchungen wurde angestrebt, ein reproduzierbares Verhalten der Kathode durch verhältnismäßig einschneidende

⁶ HAGSTRUM, H.D.: Siehe Phys. Rev. **104**, 672 (1956) für weitere Literaturangaben.

chemische Behandlung der Oberfläche zu erreichen. Dazu wurden zwei Verfahren herangezogen:

- Ausheizen in H_2 bei $400^\circ C$ (Reduktion),
- Glimmentladung in O_2 (10^5 Asec bei Zimmertemperatur).

Die γ -Werte an frisch behandelten Oberflächen erwiesen sich als reproduzierbar innerhalb $\pm 30\%$.

D. Ergebnisse

I. Stickstoff

1. Nachlieferung durch positive Ionen. Diese Effekte stellen den weitaus überwiegenden Anteil am Nachlieferungsprozeß. Es fällt auf, s. Fig. 2, daß die Nachimpulse im Stickstoff nicht genau nach Ablauf

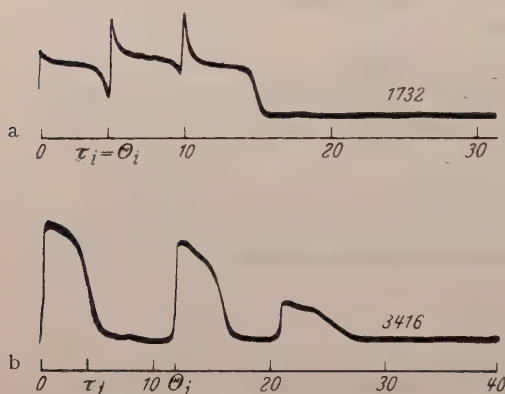


Fig. 2 a u. b. Impulsketten von Elektronenlawinen, hervorgerufen durch Elektronen-Nachlieferung positiver Ionen (γ_i -Effekt). Zeiteinheit $1 \mu\text{sec}$. Markiert sind Ionenlaufzeit τ_i und Generationsabstand Θ_i . a Sauerstoff, $E/p_0 = 73,5 \text{ V/cm T}$, $p_0 d = 28 \text{ T cm}$, $n = 4,3 \cdot 10^8$. b Stickstoff, $E/p_0 = 75 \text{ V/cm T}$, $p_0 d = 45 \text{ T cm}$, $n = 4,7 \cdot 10^8$.

von τ_i auftreten, sondern eine starke Streuung des Generationsabstandes Θ_i zeigen. In Fig. 3 ist die Wahrscheinlichkeit aufgetragen, daß im Abstand Θ_i ein Sekundärelektron per γ_i ausgelöst wird. Fig. 3 a zeigt die theoretische Verteilung, wenn man annimmt, daß zwischen Auftreffen des Ions und Auslösung des Sekundärelektrons keine merkliche Verzögerung besteht ($< 10^{-7} \text{ sec}$). $N(\Theta_i)$ ist dann proportional zur Zahl der auftreffenden Ionen, d. h. $N \sim e^{\alpha d i / \tau_i}$.

Fig. 3 b zeigt, daß in O_2 dieses Verhalten beobachtet wird. In Stickstoff zeigt sich jedoch auch nach Ablauf der Zeit τ_i eine zeitlich abklingende Emission der Kathode mit einer Zeitkonstante von etwa $1 \mu\text{sec}$. Vermutungen über den beteiligten Mechanismus (z.B. hinsichtlich verschiedener beteiligter Ionenarten oder der Mitwirkung langlebiger angeregter Zustände beim Nachlieferungseffekt) aussprechen, ist beim derzeitigen Stand der Information noch zu früh.

Nach der oben angeführten Methode (s. S. 301) wurde γ_i als Funktion der Kathodenbeschaffenheit ermittelt. Tabelle 2 zeigt die Ergebnisse. Eine Cu-Kathode wurde mechanisch poliert und im Vakuum ausgeheizt, damit sind die Werte der Zeile I aufgenommen. Durch einige Durch-

schläge in Stickstoff wird das γ_i beträchtlich erhöht: Zeile II. Wurde die Apparatur danach einige Tage belüftet, so stellten sich die Werte von Zeile I bis auf einen Faktor 2 reproduzierbar wieder ein. Zeile III, IV und V zeigen die Abhängigkeit des γ_i von Oxydation und Reduktion der Kathodenoberfläche. Die in Klammern gesetzten Werte der Zeile V geben an, daß hier die Empfindlichkeit des Meßverfahrens nicht ausreichte, um den genauen Betrag von γ_i zu bestimmen. Auch eine oxydierte Kathode ist gegen Durchschläge sehr empfindlich, wie Zeile IV zeigt. Durch erneute Oxydation

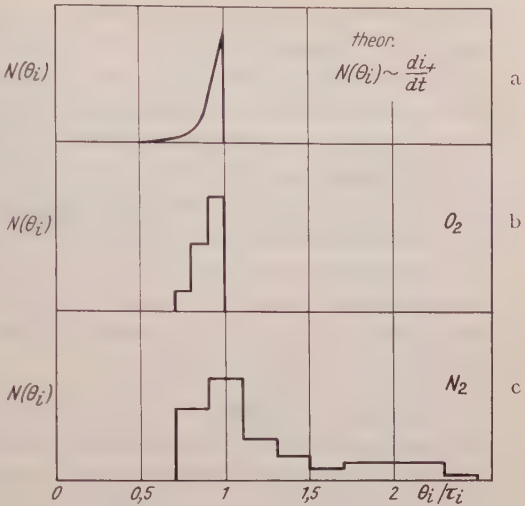


Fig. 3a—c. Relative Häufigkeit des Auftretens von Nachlieferungselektronen, ausgelöst durch positive Ionen, als Funktion des zeitlichen Abstandes vom Start der Lawine. a Keine Verzögerungseffekte zwischen dem Aufprall der positiven Ionen auf die Kathode und der Auslösung der Sekundärelektronen: theoretischer Wert $N(\theta_i) \sim \left| \frac{d i_+}{dt} \right|$. b Messung an O₂ mit reduzierter Cu-Kathode. $E/p_0 = 70$ V/cm T, $\tau_i = 5$ μ sec. c Messungen an N₂ mit oxydierter Cu- und W-Kathode. $E/p_0 = 75 \dots 110$ V/cm T, $\tau_i = 4,4 \dots 3,4$ μ sec

Tabelle 2. Nachlieferungswahrscheinlichkeit für positive Ionen, γ_i , in Stickstoff bei verschiedenen Kathodenmaterialien. $p_0 d = 30 \dots 50$ V/cm T. Nachlieferung durch Photoeffekt, γ_p , konnte nur an oxydierter Wolframkathode nachgewiesen werden, $\gamma_p \leq 2 \cdot 10^{-8}$ bei $E/p_0 = 73$ V/cm T. [a] FETZ⁷, [b] HUBER⁸ bei kleinem $E/p_0 \approx 1$ V/cm T.]

Kathode		E/p_0 V/cm T	$10^8 \gamma_i$ (Verfasser)	$10^8 \gamma_i$ (Literatur)
I	Cu, mechanisch poliert	72	0,56	30 a)
	—	74	1,2	
	—	112	2,2	
II	desgl. nach einigen Durchschlägen . .	76	14	1 a)
	Cu, oxydiert	78	0,15	
	—	84	0,13	
III	—	84	0,13	—
	W, oxydiert	73	0,42	
	—	73	0,36	
IV	Cu, oxydiert nach 100 Durchschlägen	66	30	—
V	Cu, reduziert	80	$\gg (20)$	1000 a)
	Ni, reduziert	43	$> (100)$	2000 b)

⁷ FETZ, H.: Brit. J. Appl. Phys. 6, 288 (1955).

⁸ HUBER, E.L.: Phys. Rev. 97, 267 (1955).

der Fläche läßt sich der alte γ_i -Wert reproduzierbar wiederherstellen. Bereits v. GUGELBERG⁹ fand bei $pd = 0,65$ Torr · cm (ausgeheizte Ni-Elektroden), daß die Wirkung der Ionen die des Lichtes beim Durchschlag überwiegt. Ein Vergleich unserer Meßwerte mit denen von FETZ⁷ an Cu zeigt gute Übereinstimmung. Die Absenkung von γ_i durch Sauerstoffeinwirkung wurde von E. HUBER⁸ ebenfalls beobachtet (vgl. auch PARKER¹⁰). Die bloße Berührung der Kathode mit O₂ genügte, das γ_i um etwa einen Faktor 5 zu erniedrigen.

Oszillogramme von Durchschlägen in N₂ zeigten, daß der für den Entladungsaufbau charakteristische Generationsabstand, welcher in die Bestimmung der Aufbauzeit eingeht, von der Größenordnung τ_i ist, d. h. einige μ sec beträgt.

2. Nachlieferung durch Photonen. Eine Stufung im Elektronenanstieg der Lawine, mit der sich ein Nachlieferungseffekt durch Photonen bemerkbar macht*, wurde von uns nur an Wolframoxyd kathoden

Tabelle 3. *Pro Ionisation dem Felde entzogene Energie E/α (eV) als Funktion von E/p (V/cm T) in Stickstoff. Zur Berechnung wurden die α/p -Werte von MASCH¹² benutzt. Die Ionisierungsspannung des Stickstoffes beträgt $15,576 \text{ eV}^{13}$*

E/p	E/α
30	27 270
40	4 000
50	1 340
60	690
70	432
80	308
90	240
100	198

beobachtet, s. Tabelle 2. In allen anderen Fällen ergibt eine Abschätzung nach Gl. (6), daß γ_p höchstens einige Prozent von γ_i betragen kann. Dazu ist einschränkend zu bemerken, daß die Zeitkonstante des Elektronenanstieges in Stickstoff schon bei einer Einzellawine in die Größenordnung der Elektronenlaufzeit τ_{el} kommt¹ und damit eine Stufung im Elektronenanstieg möglicherweise verdeckt.

Im Bereich $pd = 45$ bis 1000 T cm bei kleinen Überspannungen wurde aus Messungen der Aufbauzeit¹¹ auf die Existenz von Photonen-Nachlieferung als vorherrschenden Mechanismus geschlossen. Desgleichen zeigte oszillographische Untersuchung der Nachlieferung von Elektronenlawinen, daß bei hohen pd (200 Torr · cm) der Photoeffekt als Nachlieferungsquelle dominiert¹. Dieser Unterschied könnte auf die Verwendung von Ms¹¹- bzw. Fe¹-Elektroden zurückzuführen sein. Darüberhinaus bekommt man einen ganz allgemeinen Hinweis auf die Zunahme der in Anregung von Gasmolekeln umgesetzten Energie der Elektronen

* Für die Gestalt des Oszillogramms vgl. J. K. VOGEL¹, Abb. 10 und 11.

⁹ GUGELBERG, H. L. v.: *Helv. phys. Acta* **20**, 307 (1947).

¹⁰ PARKER, J. H.: *Phys. Rev.* **93**, 1148 (1954).

¹¹ KACHICKAS, G. A., u. L. H. FISHER: *Phys. Rev.* **88**, 878 (1952).

¹² MASCH, K.: *Arch. Elektrotechn.* **26**, 587 (1932).

¹³ WORLEY, R. E.: *Phys. Rev.* **64**, 207 (1943).

mit fallendem E/p durch Betrachtung der Funktion E/α von (E/p) . Sie gibt an, wieviel Energie für einen Ionisierungsakt dem Felde entzogen wird. Nur die Ionisierungsarbeit E_i wird bei der Ionisierung wirklich verbraucht, der Überschuß $E/\alpha - E_i$ findet sich in kinetischer Energie der Elektronen bzw. als durch (hauptsächlich unelastische) Stöße auf das Gas übertragene (Anregungs-) Energie wieder. Mit zunehmendem E/α entsprechend abnehmendem E/p (vgl. Tabelle 3) darf man eine Zunahme der angeregten Zustände und damit eine Steigerung der Photonen-Aktivität der Lawine erwarten.

II. Wasserstoff

Lawinenoszillogramme in H₂ zeigen bei Steigerung der Gasverstärkung das für Photo-Nachlieferung typische Aufeinandertürmen der einzelnen Generationen. Eine klare Stufung ist jedoch nicht erkennbar. Die durchgeführte Messung läßt daher nur eine Abschätzung der Mindestwerte von γ_p zu, s. Tabelle 4.

γ_i erweist sich als geringer als γ_p . Durch Oxydation der Cu-Kathode lassen sich die γ -Werte erhöhen. Die Abhängigkeit vom Kathodenzustand läuft bei beiden Mechanismen parallel. Diese Werte sind verträglich mit früheren Messungen von LAUER¹⁴ und FETZ (a. a. O.), welche beide an Cu- bzw. Ni-Oberflächen mit einer Nachweisempfindlichkeit von einigen 10⁻⁶ keine Wirkung von positiven Ionen erkennen konnte. An bisherigen Messungen im Gebiet kleiner $p\bar{d}$ in H₂ liegen die Ergebnisse von v. GUGELBERG (a. a. O.), ($p\bar{d} = 1,78 \text{ T} \cdot \text{cm}$) vor, welcher $\gamma_p \geq 2\gamma_i$ als Resultat angibt.

Tabelle 4. Nachlieferungswahrscheinlichkeit in Wasserstoff bei verschiedenen Kathodenmaterialien, $p_0\bar{d} = 38 \dots 45 \text{ V/cm T}$, $E/p_0 = 40 \dots 45 \text{ V/cm T}$

Kathode	10 ⁶ γ_p	10 ⁷ γ_i
Cu reduziert, frisch	0,5	0,5
Cu reduziert, nach 24 Std	1	1,5
Cu oxydiert	7	3
W oxydiert	1	1

III. Sauerstoff

1. Nachlieferung durch positive Ionen. Nachimpulse im Abstand der Ionenlaufzeit traten im allgemeinen nicht auf, d.h. $\gamma_i < 10^{-10}$. Nur an frisch reduzierten Cu-Kathoden beobachteten wir einen gut meßbaren γ_i -Effekt, der innerhalb einer Stunde auf ein nicht mehr wahrnehmbares Maß zurückgeht. In einigen Meßreihen konnte eine Zeitabhängigkeit der Form

$$\gamma_i = \gamma_0 e^{-t/\theta},$$

¹⁴ LAUER, E. J.: J. Appl. Phys. 23, 300 (1952).

t gemessen vom Zeitpunkt des O_2 -Einlassens an (von $t=5$ bis 20 min) mit $\gamma_0 = 10^{-7}$, $\vartheta \approx 5$ min, festgestellt werden, doch ist diese Abhängigkeit schlecht reproduzierbar.

Durch 100 Durchschläge in Sauerstoff konnte bei einer Probe das γ_i von $1 \cdot 10^{-8}$ (15 min nach Sauerstoffeinlaß) sehr schnell auf $1 \cdot 10^{-9}$ gesenkt werden. Die in der Entladung entstehenden Ionen beschleunigen vermutlich den Oxydationsvorgang. Es kommt vor, daß nach einem schnellen Abfall von etwa 15 min Dauer das γ_i zunächst 2 Std konstant bleibt, um dann erst weiter abzufallen. Auch wurde einmal ein Wiederansteigen nach 20 Std festgestellt (auf etwa 10^{-9}). Dies alles deutet auf eine langsame Oberflächenreaktion hin, in deren Verlauf sich das γ_i ändert.

Zur Streuung des Generationsabstandes Θ_i , vgl. Fig. 3.

In Übereinstimmung hiermit beobachtete PARKER¹⁰ einen γ_i -Effekt bei reinem Sauerstoff mit einer direkten Methode an frisch ausgeglühten Ta- und W-Flächen. E. HUBER⁸ sowohl als FETZ⁷ konnten in Sauerstoff γ_i nicht nachweisen.

2. Nachlieferung durch Photoeffekt. Die Oszillogramme zeigen, besonders klar erkennbar in differenziertem Zustand, eine periodische Struktur der Elektronenkomponente, die vermutlich von einem Photoeffekt an der Kathode oder in Kathodennähe im Gasraum herrührt*. Bestimmt man daraus das γ_p , so ergibt sich mit oxydierter Cu-Kathode $5 \dots 10 \cdot 10^{-7}$, bei oxydierter W-Kathode $0,2 \dots 0,04 \cdot 10^{-7}$ (dieser Wert ist von der Präparation abhängig).

Der Generationsabstand Θ_p liegt bei $E/p_0 = 64$ V/cm T, $d = 0,5$ cm, in der Größenordnung $0,8 \cdot 10^{-7}$ sec. Durch Extrapolation aus Messungen der Elektronen-Driftgeschwindigkeit¹⁵ erhält man eine Elektronenlaufzeit von $2,3 \cdot 10^{-8}$ sec, die kürzer als Θ_p ist. Das gleiche Ergebnis war bei großen $p d$ -Werten ($d = 2$ cm, $E/p_0 = 43$) gefunden worden, wo $\Theta_p = 7 \cdot 10^{-7}$ sec beobachtet wurde¹, während sich τ_{el} zu $1,1 \cdot 10^{-7}$ sec berechnet. Die Deutung dieses Sachverhaltes steht noch aus.

3. Übersteiler Durchbruch. An oxydierten Wolfram-Oberflächen war es möglich, das γ_p in O_2 bis auf einige 10^{-9} zu erniedrigen, d.h. Einzel-Lawinen von einigen 10^8 Trägern und mehr zu bekommen. Fig. 4a zeigt ein typisches Oszillogramm. Auf einen normalen Elektronenhub folgt ein schwach ansteigender Stromverlauf, der schließlich nach einigen 10^{-7} sec in einen extrem steilen Stromanstieg mündet. Ferner wird beobachtet (Fig. 4b), daß unter Umständen einige Generationen per Photoeffekt erzeugter Nachlieferungslawinen ablaufen können, ehe der übersteile Durchbruch einsetzt.

Der Durchschlag führt zur Ausbreitung einer Wanderwelle mit derart steiler Stirn, daß sie alle Abschirmungen durchbricht und direkt auf die Endstufen des

* Siehe Fußnote auf S. 306.

¹⁵ BRADBURY, N. E., u. R. A. NIELSEN: Phys. Rev. **49**, 338 (1936); **51**, 69 (1937).
RAETHER, H.: Z. Physik **107**, 91 (1937). — RIEMANN, W.: Z. Physik **122**, 216 (1944).

Oszillographenverstärkers einstreut. Sie überspringt dabei das zur Kompensation der Kipp-Verzögerung in den Verstärkungspfad eingeschaltete Laufzeitkabel von $0,5 \mu\text{sec}$ Länge und markiert sich im Oszillogramm durch einen kurzen Wellenzug,

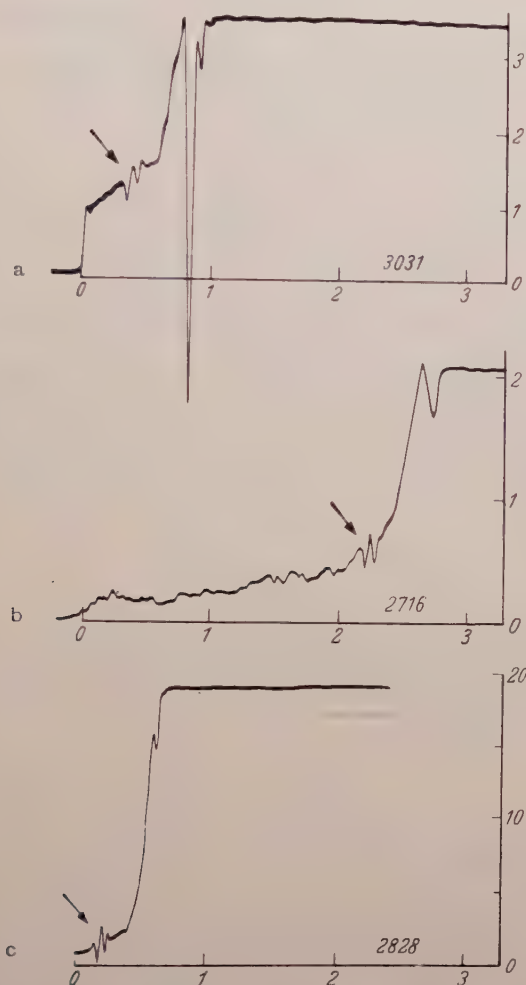


Fig. 4 a—c. Übersteiler Durchschlag in Sauerstoff, $p_0 d = 41,4 \text{ T cm}$ (bei der ersten Aufnahme) bzw. $47,3 \text{ T cm}$ (bei den übrigen zwei Aufnahmen), Durchschlagsspannung $U_D = 2,706$ bzw. 3000 V . Zeiteinheit $1 \mu\text{sec}$. Die Ordinatenachse ist in Ionenzahlen n nach Gl. (3) geeicht, Einheit 10^9 Ionen. Die Aussteuerungsgrenze des Verstärkers liegt im letzten Bild bei etwa $0,5 \text{ mA}$ Strom in der Entladungsstrecke, die Eingangs-Zeitkonstante τ_E beträgt $6 \cdot 10^{-10} \text{ sec}$. Ein durch einen Pfeil gekennzeichnete Schwingungszug wird im Text näher erläutert

der $0,5 \mu\text{sec}$ vor dem eigentlichen Durchbruch erscheint (in Fig. 4 durch einen Pfeil gekennzeichnet). Dieser Effekt wurde nicht durch zusätzliche Abschirmung beseitigt, da er zeigt, daß sich der übersteile Durchschlag in Sauerstoff außerordentlich viel rascher vollzieht, als z. B. der Durchschlag in Wasserstoff, wo eine

solche Einstreuung nicht beobachtet werden konnte. Zweitens zeigt sein Auftreten genau $0,5 \mu\text{sec}$ vor der steilen Flanke im Oszillogramm, daß die Zeit vom steilen Anstieg im Oszillogramm, der bis $0,5 \text{ mA}$ aufgenommen werden konnte, bis zum Erreichen höchster Stromstärken (die ja die Ursache für die steile Wanderwelle bilden) höchstens in der Größenordnung von 10^{-7} sec liegen kann, wahrscheinlich ist sie noch weitaus kürzer.

Vermutlich handelt es sich hierbei um eine Form des Kanaldurchschlages, wie sie in Gas-Dampf-Gemischen unter Überspannung mit der Nebelkammer untersucht worden ist¹⁶. Bemerkenswert ist, daß in unseren Oszillogrammen zwischen dem Elektronenhub („Erreichen der kritischen Verstärkung“) und dem steilen Stromanstieg („Ausbildung des Entladungskanals“) noch eine statistisch schwankende Verzögerungszeit bis zu einigen 10^{-7} sec liegt, während der das Gas fortlaufend weiter ionisiert wird, ohne daß man am Oszillogramm den Ablauf weiterer Lawinen (etwa durch Photoeffekt ausgelöst) beobachtet.

Diese Arbeit wurde als Teil einer Dissertation im Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg angefertigt. Dem Institutsleiter, Herrn Professor Dr. H. RAETHER, möchte ich für die Anregung und die Förderung der Arbeit herzlich danken.

¹⁶ RAETHER, H.: Z. Physik **112**, 464 (1939).

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Die Berechnung der Kern-Quadrupol-Streuung positiver Myonen im schwach relativistischen Energiebereich*

Von

J. V. BEHR**

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 23. November 1957)

Für die Streuung positiv geladener Myonen von etwa 25 MeV an schweren Kernen wird der Einfluß eines Kernquadrupolmomentes auf die Streuverteilung berechnet. Unter der Voraussetzung, daß das zur kugelsymmetrischen Wechselwirkung hinzutretende Quadrupolpotential, sowie die Spin-Bahn-Kopplung als Störungen betrachtet werden dürfen, wird die Dirac-Gleichung durch ein Näherungsverfahren gelöst, das der Bornschen Rechenmethode nachgebildet ist, im Gegensatz zu dieser jedoch das zur kugelsymmetrischen Wechselwirkung gehörende Wellenfeld als Ausgangslösung benutzt. Die erhaltene Streuverteilung wird mit der in gewöhnlicher Bornscher Näherung berechneten verglichen.

Einleitung

Die große Empfindlichkeit der Streuverteilung *positiv* geladener Myonen im schwach relativistischen Energiebereich gegenüber Änderungen der Ladungsverteilung $\varrho(r)$ eines schweren Kerns¹ beruht auf der starken Änderung des elektronenoptischen Brechungsindex

$$n(r) = \sqrt{1 - \frac{eV(r)}{E}} \quad (1)$$

mit der von $\varrho(r)$ herrührenden potentiellen Energie $eV(r)$, bei geeignet gewählter Gesamtenergie E .

Nachdem nun von MARSCHALL und MEYER² Berechnungen über die Streuverteilung schwach relativistischer Myonen an schweren kugelsymmetrischen Kernen ausgeführt worden sind, entsteht die Frage, wie sich die so berechnete Streuverteilung modifiziert, wenn der Kern ein elektrisches Quadrupolmoment besitzt.

Bei der Streuung von Elektronen der Energie 182 MeV an Kernen ist diese Frage gleichfalls interessant geworden und dort hat sich

* Darmstädter Dissertation, D 17.

** Jetzt Physikalisches Institut der Universität Freiburg.

¹ MARSCHALL, H.: Z. Physik **138**, 93 (1954).

² MARSCHALL, H., u. G. MEYER: Z. Physik **143**, 17 (1955).

gezeigt³, daß ein großes Kernquadrupolmoment, wie beispielsweise das des Tantals, einen durchaus meßbaren Effekt hervorruft.

Wegen der nicht möglichen Separierbarkeit der Wellengleichung bei Anwesenheit nicht-kugelsymmetrischer Wechselwirkungen erscheint zunächst die Bornsche Näherung als gegebene Rechenmethode. Es zeigt sich jedoch, daß sie für mittlere und schwere Kerne kein geeignetes Näherungsverfahren ist, weil sie eine ebene Welle als Ausgangslösung benutzt und deshalb die gesamte Wechselwirkung als Störung betrachtet.

Es ist daher notwendig, für mittlere und schwere Kerne andere Näherungsverfahren zu entwickeln. Das von YENNIE, RAVENHALL und DOWNS^{4,5} auf die Elektronenstreuung zugeschnittene Störungsverfahren beruht auf der Approximation des durch den kugelsymmetrischen Anteil des Potentials bestimmten Wellenfeldes in Kernnähe durch eine „ebene Welle“ mit veränderter Amplitude und Wellenzahl, sowie schwach gekrümmten Wellenfronten. Diese Modifikation der ebenen Welle reicht sicherlich nicht zur Beschreibung der hier interessierenden Streuung positiver Myonen aus, da das Verhältnis $e \cdot V_{\max}/E$ hier nahezu 1 ist, während es bei den Bedingungen der Elektronenstreuung etwa $-0,15$ beträgt.

Für die positiven Myonen wird daher im Anschluß an frühere Vorschläge^{4,6} ein Störungsverfahren entwickelt, das den Einfluß der Quadrupolwechselwirkung auf die Streuung auch dann zu berechnen gestattet, wenn das Wellenfeld durch den kugelsymmetrischen Anteil des Potentials stark deformiert ist. Dabei wird angenommen, daß der nicht kugelsymmetrische Anteil des Potentials von der Form

$$V_Q(r) = \frac{eQ}{2} w(r) \cdot P_2(\cos \bar{\vartheta}) \quad \text{mit} \quad w(r) \rightarrow \frac{1}{r^3} \quad (2)$$

ist, wobei $\bar{\vartheta}$ den Winkel zwischen Kernachse I und Radiusvektor r bezeichnet,

Die Erweiterung der Bornschen Näherung

Als Ausgangspunkt der Rechnungen diene die iterierte Dirac-Gleichung

$$\{(E - eV)^2 - c^2 \hat{p}^2 - m^2 c^4 - i e \hbar c (\vec{\alpha}, \text{grad } V)\} \psi = 0 \quad (3)$$

für den Spinor $\psi(r)$.

³ HOFSTADTER, R.: Rev. Mod. Phys. **28**, 214 (1956).

⁴ DOWNS, B. W., D. G. RAVENHALL u. D. R. YENNIE: Phys. Rev. **98**, 277 A.

⁵ DOWNS, B. W., D. G. RAVENHALL u. D. R. YENNIE: Phys. Rev. **106**, 1285 (1957).

⁶ BEHR, J. V., u. H. MARSCHALL: Z. Physik **143**, 257 (1955).

In

$$V(r) = Z \cdot e (v_K(r) + v_Q(r)) \quad (4)$$

bezeichne $v_K(r)$ den kugelsymmetrischen und

$$v_Q(r) = \frac{Q}{2Z} \cdot w(r) \cdot P_2(\cos \bar{\vartheta}) \quad (4a)$$

den nicht-kugelsymmetrischen Anteil des Potentials.

Mit den Abkürzungen

$$\frac{E^2 - m^2 c^4}{\hbar^2 c^2} = k^2 \quad \frac{Z e^2}{\hbar c} = \gamma \quad \frac{c}{v} \cdot \gamma = \kappa \quad (5)$$

erhalten wir für (3) die übersichtliche Form

$$\{\Delta + k^2 - 2k\kappa v_K(r) + \gamma^2 v_K^2(r)\} \psi = \sum_{i=1}^4 D_i \psi \quad (6)$$

der Wellengleichung. Dabei bedeuten

$$\left. \begin{aligned} D_1 &= i\gamma(\vec{\alpha}, \text{grad } v_K) & D_3 &= -\gamma^2 v_K \cdot v_Q \\ D_2 &= 2k\kappa v_Q & D_4 &= i\gamma(\vec{\alpha}, \text{grad } v_Q) \end{aligned} \right\} \quad (6a)$$

Für den hier interessierenden schwach relativistischen Energiebereich kann neben den eigentlichen, quadrupolbehafteten Störtermen D_2 bis D_4 auch die quadrupolfreie Spin-Bahn-Kopplung D_1 als Störung angesehen werden, was insbesondere für positive Myonen, wegen der Abbremsung im Coulomb-Feld, gerechtfertigt erscheint. Den im Störpotential quadratischen Term $\gamma^2 v_Q^2$ haben wir in (6) bereits unterdrückt.

Zur Lösung der Wellengleichung (6) gehen wir nach dem Vorbild der Bornschen Näherung zur *inhomogenen* Gleichung

$$\{\Delta + k^2 - 2k\kappa v_K + \gamma^2 v_K^2\} \psi = \sum_{i=1}^4 D_i \psi_0 \quad (7)$$

über.

Die Lösung der hierzu gehörigen homogenen Gleichung

$$\{\Delta + k^2 - 2k\kappa v_K + \gamma^2 v_K^2\} \psi_0 = 0 \quad (8)$$

können wir dann als Ausgangslösung einer Näherungsrechnung im Sinne einer erweiterten Bornschen Näherung⁶ verwenden. Der Vorteil dieser Rechenweise gegenüber der Bornschen Näherung ist evident. Dort ist die Ausgangsfunktion Lösung des kräftefreien Operators $\Delta + k^2$, hier dagegen wird bereits in der Ausgangsfunktion die von dem Quadrupolpotential und der Spin-Bahn-Kopplung freie Wechselwirkung berücksichtigt.

Zur Berechnung des Streuquerschnittes für den nicht-polarisierten Mesonenstrahl genügt vorerst die Berücksichtigung nur einer Polarisationsrichtung der Mesonen. Für den Spin wählen wir die Einfallrichtung der Teilchen und bezeichnen den zugehörigen Spinor mit ψ^+ . Da bei Streuproblemen überdies die Beschränkung auf zwei Spinorkomponenten möglich ist, notieren wir speziell die Lösung der homogenen Gl. (8)

$$\psi_0^+ = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} u(\mathbf{k}; \mathbf{r}) \quad (9)$$

mit

$$u(\mathbf{k}; \mathbf{r}) = \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n e^{i(\eta_n + \delta_n)} y_n(kr) P_n(\cos \vartheta), \quad (9a)$$

wofür asymptotisch gilt

$$u(\mathbf{k}; \mathbf{r}) \rightarrow e^{i\mathbf{k}\mathbf{r} + i\pi \ln(kr - \mathbf{k}\mathbf{r})} + f_0(\vartheta) r^{-1} e^{ikr - i\pi \ln 2kr}. \quad (9b)$$

Die inhomogene Gl. (7) läßt sich mit Hilfe der Greenschen Funktion von (8) lösen. Diese ist für einen entfernten Aufpunkt in der Richtung

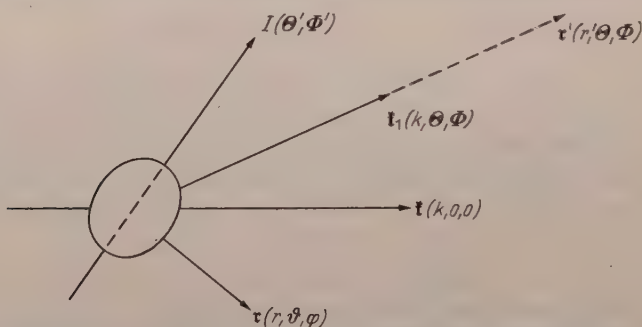


Fig. 1. Koordinatensystem. Neben den hier angegebenen, auf die Einfallrichtung \mathbf{k} bezogenen Winkeln, tritt noch der Winkel $\bar{\vartheta}$ zwischen der Kernachse I und dem Radiusvektor \mathbf{r} auf

des Wellenvektors \mathbf{k}_1 asymptotisch gegeben durch (s. auch Anhang)

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \xrightarrow{|\mathbf{r}'| \rightarrow \infty} \frac{e^{ikr' - i\pi \ln kr'}}{-4\pi r'} u(-\mathbf{k}_1; \mathbf{r}) \quad (10)$$

wobei $u(-\mathbf{k}_1; \mathbf{r})$ durch eine einfache Raumdrehung aus $u(\mathbf{k}; \mathbf{r})$ hervorgeht (vgl. Fig. 1).

Damit gewinnt die Lösung der inhomogenen Gl. (7) mit Spin in Einfallrichtung die asymptotische Gestalt

$$\psi^+(\mathbf{r}') \xrightarrow{|\mathbf{r}'| \rightarrow \infty} \psi_0^+(\mathbf{r}') + \sum_{i=1}^4 \int G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') D_i(\mathbf{r}) \psi_0^+(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (11)$$

Im Hinblick auf die Bildung des Streuquerschnitts ist es zweckmäßig die Abkürzungen

$$\begin{pmatrix} f_i \\ g_i \end{pmatrix} = -\frac{1}{4\pi} \int u(-\mathbf{r}_1; \mathbf{r}) D_i(\mathbf{r}) \psi_0^*(\mathbf{r}) d\tau \quad (12)$$

einzuführen. Dann folgt für (11) die Darstellung

$$\psi^*(\mathbf{r}') \rightarrow \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' + i\kappa \ln(kr' - \mathbf{f}\mathbf{r}')} + \left[\sum_{i=0}^4 f_i \right] r'^{-1} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' - i\kappa \ln 2kr'} + \left[\sum_{i=1}^4 g_i \right] \quad (13)$$

Da wir nach Verabredung auch die quadrupolfreie Spin-Bahn-Kopplung D_1 als Störung betrachten, wird unsere Lösung für $Q=0$ nicht genau in die Lösung der Dirac-Gleichung übergehen, die wir unter Benutzung der Arbeit von MARSHALL und MEYER² mit

$$\tilde{\psi}_{Q=0}^* \rightarrow \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' + i\kappa \ln(kr' - \mathbf{f}\mathbf{r}')} + \begin{pmatrix} \tilde{f} \\ \tilde{g} \end{pmatrix} r'^{-1} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' - i\kappa \ln 2kr'} \quad (14)$$

bezeichnen wollen. Statt dessen ergibt die Lösung (13) für diesen Fall

$$\psi_{Q=0}^* \rightarrow \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' + i\kappa \ln(kr' - \mathbf{f}\mathbf{r}')} + \begin{pmatrix} f_0 + f_1 \\ g_1 \end{pmatrix} r'^{-1} e^{i\mathbf{f}\mathbf{r}' - i\kappa \ln 2kr'}. \quad (15)$$

Wenn wir im Endresultat jedoch ersetzen

$$f_0 + f_1 \text{ durch } \tilde{f} \text{ und } g_1 \text{ durch } \tilde{g} \quad (16)$$

so wird die Lösung (13) verbessert und geht für $Q=0$ in diejenige der Dirac-Gleichung über. Auf die Güte der Näherung für die quadrupol-behafteten Terme bleibt diese Ersetzung natürlich ohne Einfluß.

Die Berechnung und Mittelung des Streuquerschnitts

Der differentielle Streuquerschnitt für Teilchen mit Spin in Einfallsrichtung ergibt sich mit Hilfe von (13) und (16) zu

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |\tilde{f} + f_2 + f_3 + f_4|^2 + |\tilde{g} + g_4|^2. \quad (17)$$

Dieser Streuquerschnitt muß nun über die verschiedenen Orientierungen gemittelt werden, wie sie in einer unpolarisierten Streufolie vorliegen. Für nicht zu kleine Kerndrehimpulse läßt sich diese Mittelung korrespondenzmäßig, d.h. mit kontinuierlicher Winkelverteilung, durchführen⁷.

⁷ Vgl. in diesem Zusammenhang die Ausführungen von DOWNS, B.W., D.G. RAVENHALL u. D.R. YENNIE: Phys. Rev. **106**, 1285 (1957).

Für die in f_i oder g_i linearen Glieder von (17) kann diese Mittelung bereits am Integranden von (12) ausgeführt werden. Wegen [vgl. (2) und (6a)]

$$D_i \sim v_Q = \frac{Q}{2Z} \cdot w(r) \cdot P_2(\cos \vartheta)$$

tragen diese Glieder nichts zum gemittelten Streuquerschnitt bei. Es bleibt dann

$$\overline{\frac{d\sigma}{d\Omega}} = |\tilde{f}|^2 + |\tilde{g}|^2 + \overline{|f_2 + f_3 + f_4|^2} + \overline{|g_4|^2}. \quad (18)$$

Das heißt, der differentielle Gesamtstreuquerschnitt setzt sich additiv aus dem vom kugelsymmetrischen Potential herrührenden Anteil

$$\frac{d\sigma_K}{d\Omega} = |\tilde{f}|^2 + |\tilde{g}|^2 \quad (19)$$

und dem vom Quadrupolmoment abhängigen Anteil

$$\frac{d\sigma_Q}{d\Omega} = \overline{|f_2 + f_3 + f_4|^2} + \overline{|g_4|^2} \quad (20)$$

zusammen. Dabei ist $\overline{|f_2|^2}$ der Hauptterm der Quadrupolstreuung während die übrigen Glieder relativistischen Ursprungs sind.

Die Berechnung des unrelativistischen Hauptterms

Setzen wir in den Hauptterm

$$f_2 = - \frac{1}{4\pi} \int u(-\mathfrak{k}_1; \mathbf{r}) D_2(\mathbf{r}) u(\mathfrak{k}; \mathbf{r}) d\tau \quad (12a)$$

die Entwicklungen (9a) ein und beziehen sämtliche vorkommenden Winkel mit Hilfe des Additionstheorems der Kugelfunktionen auf die Einfallrichtung \mathfrak{k} , so ergibt sich eine vierfache Summe für den Integranden. Lassen wir nun nacheinander die Integrationen über die Winkel φ und ϑ folgen, so läßt sich wegen der Relationen vom Typ (vgl. Anhang)

$$\left. \begin{aligned} \int_0^{2\pi} e^{im\varphi} e^{-iK\varphi} d\varphi &= 2\pi \delta_{m,K} \\ \int_{-1}^{+1} P_l(x) P_n^K(x) P_2^K(x) dx &= c(n, K, -2) \delta_{l, n-2} + \\ &\quad + c(n, K, 0) \delta_{l, n} + c(n, K, 2) \delta_{l, n+2} \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

die vierfache Summe auf die Doppelsumme

$$f_2 = - \frac{Q\hbar\kappa}{2Z} \sum_{K=-2}^{+2} \sum_{n=0}^{\infty} B_n^K(\Theta, \Phi) P_2^K(\cos \Theta') e^{iK\Phi'} \quad (22)$$

reduzieren. Mit den Abkürzungen

$$a_{n,m} = e^{i(\eta_n + \eta_m + \delta_n + \delta_m)} \int_0^{\infty} y_n(kr) y_m(kr) w(r) r^2 dr \quad (23)$$

für die in (12a) mit enthaltenen Radialintegrationen gilt dann im einzelnen in (22)

$$\left. \begin{aligned} B_n^0 &= \left\{ \frac{2n(n+1)(2n+1)}{(2n-1)(2n+3)} a_{n,n} P_n - \frac{3(n+1)(n+2)}{2n+3} a_{n,n+2} [P_n + P_{n+2}] \right\} \\ B_n^{\pm 1} &= \left\{ \frac{2n+1}{(2n-1)(2n+3)} a_{n,n} P_n^1 + \frac{n+2}{2n+3} a_{n,n+2} \left[P_n^1 - \frac{n+1}{n+2} P_{n+2}^1 \right] \right\} e^{\pm i\Phi} \\ B_n^{\pm 2} &= \left\{ \frac{-(2n+1)}{2(2n-1)(2n+3)} a_{n,n} P_n^2 - \frac{1}{4(2n+3)} a_{n,n+2} [P_n^2 + P_{n+2}^2] \right\} e^{\mp 2i\Phi} \end{aligned} \right\} \quad (22a)$$

Darin bedeuten Θ, Φ die Streuwinkel, während Θ', Φ' die Richtung der Kernachse charakterisieren (vgl. Fig. 1). Verabredungsgemäß ist $|f_2|^2$ über die letzteren zu mitteln. Man findet

$$\overline{|f_2|^2} = \left(\frac{Qk\kappa}{2Z} \right)^2 \cdot \frac{1}{5} \cdot \sum_{K=-2}^{+2} \frac{(2+|K|)!}{(2-|K|)!} \sum_{n=0}^{\infty} B_n^K(\Theta, \Phi)^2. \quad (24)$$

Damit ist der Hauptterm als Kugelfunktionsreihe dargestellt, die sich, nach Ermittlung der $a_{n,m}$ numerisch aufsummieren läßt.

Die Berechnung der relativistischen Glieder

Das bei dem Hauptterm angewandte Verfahren läßt sich leicht auf den Term f_3 übertragen. Der einzige Unterschied besteht in den (23) entsprechenden Radialintegralen. Die Summe $f_2 + f_3$ läßt sich in völliger Analogie zu den vorstehenden Rechnungen behandeln. Man findet

$$\overline{|f_2 + f_3|^2} = \left(\frac{Qk\kappa}{2Z} \right)^2 \cdot \frac{1}{5} \cdot \sum_{K=-2}^{+2} \frac{(2+|K|)!}{(2-|K|)!} \sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^K(\Theta, \Phi)^2 \quad (24a)$$

wobei die \tilde{B}_n^K aus den B_n^K entstehen, indem in (22a) $a_{n,m}$ durch

$$\tilde{a}_{n,m} = a_{n,m} - \frac{\gamma^2}{2k\kappa} e^{i(\eta_n + \eta_m + \delta_n + \delta_m)} \int_0^{\infty} y_n y_m v_K w r^2 dr \quad (24b)$$

ersetzt wird. Dabei hat v_K die in (4) angegebene Bedeutung.

Anders ist es beim Spin-Bahn-Integral f_4, g_4 . Hier erweist sich das entwickelte Verfahren wegen der Gradientenbildung als sehr mühsam und es erscheint angebracht in dem von uns behandelten Fall schwach relativistischer Myonen das Spin-Bahn-Integral durch ein einfacheres anzunähern.

Zunächst läßt sich das Spin-Bahn-Integral durch partielle Integration überführen in

$$\left. \begin{aligned} \begin{pmatrix} f_4 \\ g_4 \end{pmatrix} &= \frac{-\gamma}{4\pi} \int v_Q e^{i(\mathbf{t}-\mathbf{t}_1)\mathbf{r}} W d\tau (\vec{\alpha}, \mathbf{t}-\mathbf{t}_1) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \\ &+ \frac{i\gamma}{4\pi} \int v_Q e^{i(\mathbf{t}-\mathbf{t}_1)\mathbf{r}} (\vec{\alpha}, \text{grad } W) d\tau \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

wobei $W = W(\mathfrak{k}; \mathfrak{k}_1; \mathfrak{r})$ durch die Beziehung

$$u(\mathfrak{k}; \mathfrak{r}) u(-\mathfrak{k}_1; \mathfrak{r}) = e^{i(\mathfrak{k} - \mathfrak{k}_1)\mathfrak{r}} W(\mathfrak{k}; \mathfrak{k}_1; \mathfrak{r}) \quad (26)$$

definiert ist.

Weitergehende, hier unterdrückte Abschätzungen zeigen, daß in dem zu den Integralen (25) vorwiegend beitragenden Gebiet die Forderung

$$|(\mathfrak{k} - \mathfrak{k}_1) W| \gg |\text{grad } W| \quad (27)$$

vernünftig erscheint. Wir können dann das zweite Integral in (25) gegenüber dem ersten vernachlässigen und das Spin-Bahn-Integral läßt sich dann auf den Hauptterm zurückführen, wobei man findet⁸

$$|f_2 + f_4|^2 + |g_4|^2 = |f_2|^2 \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \sin^2 \frac{\Theta}{2}\right). \quad (28)$$

Die Resultate (24a) und (28) können nun unmittelbar zur Berechnung von $d\sigma_Q$ benutzt werden. Führt man nämlich (28) in (20) ein, so folgt

$$\frac{d\sigma_Q}{d\Omega} = \overline{|f_2 + f_3|^2} \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \sin^2 \frac{\Theta}{2}\right) \quad (29)$$

bis auf

$$\frac{v^2}{c^2} (f_2^* f_3 + f_3^* f_2 + f_3^* f_3) + f_3^* f_4 + f_4^* f_3. \quad (30)$$

Eine Abschätzung der Größenordnung zeigt, daß

$$\left| \frac{f_3}{f_2} \right| \approx \begin{cases} \frac{1}{2} \gamma \frac{v}{c} & \text{für } kR < 1 \\ \frac{1}{2} \gamma \frac{\lambda}{R} \approx 0,08 \cdot \left(\frac{Z}{80}\right)^{\frac{2}{3}} & \text{für } kR > 1 \end{cases}$$

$$\left| \frac{f_4}{f_2} \right| \approx \frac{v^2}{2c^2}$$

gilt. Mithin folgt dann unmittelbar, daß (30) gegenüber (29) vernachlässigt werden kann und daß überdies in (29) nur die Terme

$$|f_2|^2 \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \sin^2 \frac{\Theta}{2}\right), \quad f_2^* f_3 + f_3^* f_2$$

gemeint sind.

Bis hierher gilt immer noch die Beschränkung auf Teilchen mit Spin in Einfallrichtung. Führt man nun die entsprechenden Rechnungen für Teilchen mit entgegengesetztem Spin aus, so ergibt sich ebenfalls der Ausdruck (29). Nach einem allgemeinen Satz⁹ folgt dann, daß (29)

⁸ Vgl. MOTT, N. F., u. H. S. W. MASSEY: Theory of Atomic Collisions, S. 120. Oxford: University Press 1949.

⁹ MOTT, N. F., u. H. S. W. MASSEY: Theory of Atomic Collisions, S. 70. Oxford: University Press 1949.

auch der Streuquerschnitt für unpolarisiert einfallenden Teilchenstrom ist.

Zur Durchführung eines Beispiels wurde dem Potential

$$V_K = \begin{cases} \frac{Ze}{2R} \left(3 - \frac{r^2}{R^2} \right) & \text{für } r < R \\ \frac{Ze}{r} & \text{für } r > R \end{cases} \quad (31)$$

der homogen geladenen Kugel das Quadrupolpotential

$$V_Q = \frac{eQ}{2} \cdot P_2(\cos \vartheta) \begin{cases} r^2 R^{-5} & \text{für } r < R \\ r^{-3} & \text{für } r > R \end{cases} \quad (32)$$

überlagert. Die Summe beider Potentiale entspricht in erster Näherung dem eines homogen geladenen Rotationsellipsoids der Gesamtladung Z mit den Hauptachsen

$$2R \pm \frac{4}{5} \frac{Q}{Z \cdot R}.$$

Um bereits vorhandene Rechnungen benutzen zu können, sind die in der Arbeit von MAR-SCHALL und MEYER² gewählten Daten

$$Z = 80$$

$$R = 7,03 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

$$E = 27 \text{ MeV}$$

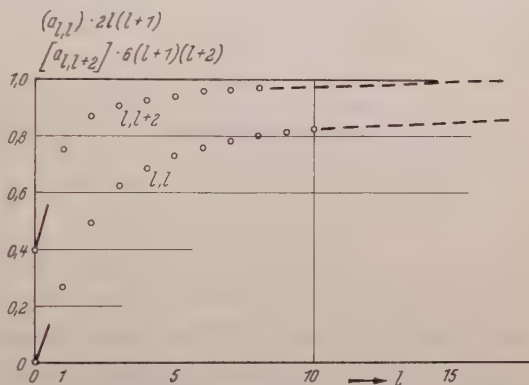


Fig. 2. Ergebnisse der maschinellen Integration. (Für $l \rightarrow \infty$ konvergieren die Produkte $|a_{l,l}| \cdot 2l(l+1)$ und $|a_{l,l+2}| \cdot 6 \cdot (l+1)(l+2)$ gegen 1)

übernommen worden.

Die numerischen Rechnungen lassen sich in zwei Gruppen einteilen: Die Berechnung der Radialintegrale und der Phasen δ_n , womit die Koeffizienten $\tilde{a}_{n,m}$ bekannt sind, und daran anschließend dann die Summierung der schlecht konvergierenden Kugelfunktionsreihen (24a).

Für beide Aufgaben wurden Rechenanlagen in Anspruch genommen. Die Integrale und Phasen wurden auf der Integrieranlage des Rheinisch-Westfälischen Instituts für Instrumentelle Mathematik von Dr. P.F. MÜLLER ermittelt. Die Ergebnisse sind in Fig. 2 dargestellt. Darin ist das Verhältnis der Integrale zu verwandten Integralen mit Bessel-Funktionen aufgetragen. Eine noch größere Verwandtschaft besteht zu kürzlich von H. BUCHHOLZ ermittelten Integralen, die im Anhang zusammengestellt sind.

Durch eine Bemerkung von FESHBACH¹⁰ veranlaßt, wurden die Reihen (24a) mit Hilfe der Eulerschen Reihentransformation

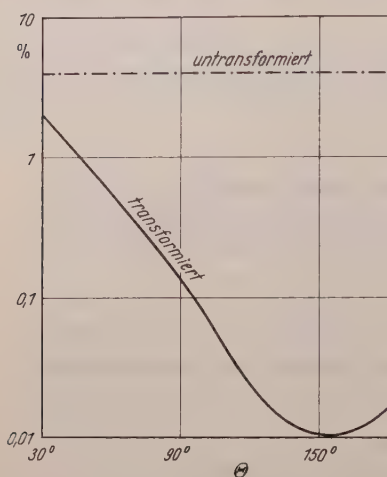


Fig. 3. Erfolg der Euler-Transformation in Abhängigkeit vom Umlenkwinkel Θ . Aufgetragen ist die relative Größe des 16. Gliedes der untransformierten und der transformierten Reihen

$$\sum_{n=0}^{\infty} (-)^n a_n = \sum_{n=0}^{\infty} 2^{-n-1} \Delta^n a_0 \quad (33)$$

unter Anwendung der programmgesteuerten Rechananlage IBM 650 (Institut für Praktische Mathematik, Darmstadt, Prof. A. WALTHER) aufsummiert. Der Erfolg dieser Transformation ist in Fig. 3 dargestellt. Die mittlere Größe des 16. Gliedes der transformierten bzw. untransformierten Reihen ist in Abhängigkeit vom Streuwinkel Θ betrachtet. Man erkennt, daß der Erfolg der Transformation stark vom Streuwinkel abhängt und besonders für größere Streuwinkel, auf die sich das physikalische Interesse vorwiegend erstreckt, sehr günstig ist. Die Endsummen der Reihen (24a) sind in Tabelle 1 eingetragen.

Tabelle 1. Werte der Kugelfunktionsreihen (24a)

	A	B	C	D	E	F
30°	+ 0,0032	− 0,1475	+ 1,0400	+ 0,0092	+ 0,0245	− 0,1145
60°	+ 0,0200	− 0,0121	+ 0,1480	− 0,0079	+ 0,2904	− 0,7179
80°	− 0,0041	+ 0,1162	− 0,1067	− 0,0459	+ 0,2970	− 0,4847
90°	− 0,0244	+ 0,1583	− 0,1463	− 0,0610	+ 0,2699	− 0,3657
100°	− 0,0467	+ 0,1824	− 0,1517	− 0,0711	+ 0,2335	− 0,2621
120°	− 0,0885	+ 0,1821	− 0,1106	− 0,0780	+ 0,1525	− 0,1160
150°	− 0,1283	+ 0,1067	− 0,0308	− 0,0711	+ 0,0588	− 0,0193
180°	− 0,1407	0	0	− 0,0664	0	0

$$A = \operatorname{Re} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^0 \right)$$

$$D = \operatorname{Im} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^0 \right)$$

$$B = 6 \cdot \operatorname{Re} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^1 e^{i\varphi} \right)$$

$$E = 6 \cdot \operatorname{Im} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^1 e^{i\varphi} \right)$$

$$C = 24 \cdot \operatorname{Re} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^2 e^{2i\varphi} \right)$$

$$F = 24 \cdot \operatorname{Im} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \tilde{B}_n^2 e^{2i\varphi} \right)$$

¹⁰ FESHBACH, H.: Phys. Rev. **88**, 295 (1952).

Numerische Ergebnisse

Die Diskussion der Ergebnisse erfolgt zweckmäßig mit Hilfe der Streuanomalie

$$R = \frac{\overline{d\sigma}}{d\Omega} \frac{4\hbar^2}{\kappa^2} \sin^4 \frac{\Theta}{2}. \quad (34)$$

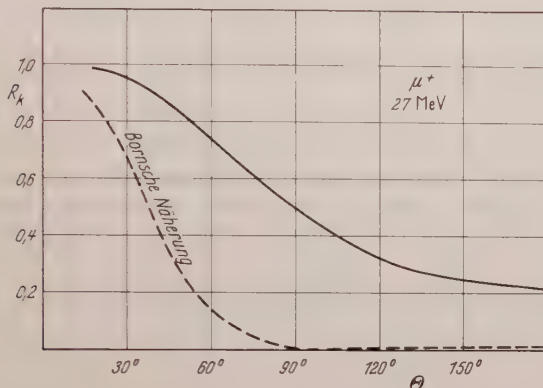


Fig. 4. Die Streuverteilung von 27 MeV- μ^+ -Mesonen an kugelsymmetrischen Kernen. Nach MARSHALL und MEYER¹ (durchgehend) und in Bornscher Näherung (durchbrochen)

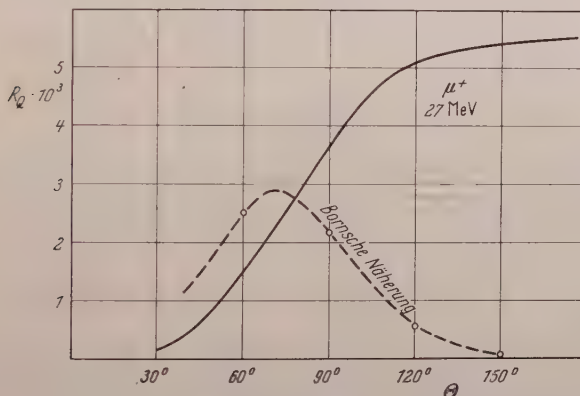


Fig. 5. Die vom Quadrupolmoment herrührende, zusätzliche Streuverteilung von 27 MeV- μ^+ -Mesonen, nach dem hier angegebenen Verfahren (durchgehend) und in Bornscher Näherung (durchbrochen)

Aus (18) erhalten wir

$$R = R_K + R_Q \quad (35)$$

mit

$$R_K = \frac{d\sigma_K}{d\Omega} \frac{4\hbar^2}{\kappa^2} \sin^4 \frac{\Theta}{2} \quad (36)$$

und

$$R_Q = \frac{d\sigma_Q}{d\Omega} \frac{4\hbar^2}{\kappa^2} \sin^4 \frac{\Theta}{2}. \quad (37)$$

Fig. 4 zeigt den Verlauf von R_K , welches der Arbeit von MARSHALL und MEYER² entnommen ist. Bei derselben Mesonen-Energie von

27 MeV zeigt Fig. 5 den Verlauf des Quadrupolanteils der Streuung, wobei $Q = 6,35 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ gesetzt ist. Der Einfluß des Quadrupolmoments auf die Streuverteilung steigt mit wachsendem Umlenkwinkel rasch an: So beträgt das Verhältnis R_Q/R bei 60° etwa 0,2% bei 120° bereits 1,5%.

Die Fig. 4 und 5 zeigen überdies die mit der gewöhnlichen Bornschen Näherung erhaltenen Resultate. Die Unzuverlässigkeit dieses Rechenverfahrens bei dem vorliegenden Problemkreis wird dabei recht eindrucksvoll demonstriert. Für die anschauliche Erklärung der Abweichung wird man insbesondere die gegenüber der einfallenden ebenen Welle in Kernnähe vergrößerte Wellenlänge heranziehen.

Zum Schluß möchte ich Herrn Professor Dr. H. MARSHALL meinen ganz besonderen Dank aussprechen für die Einführung in den vorliegenden Problemkreis und seine wertvolle Kritik in vielen Diskussionen. Für die Überlassung eines unveröffentlichten Manuskriptes weiß ich mich Herrn Professor Dr. H. BUCHHOLZ verpflichtet. Herrn Professor Dr. O. SCHERZER habe ich für wertvolle Diskussionen zu danken. Für die Möglichkeit numerische Rechnungen in seinem Institut auszuführen, möchte ich Herrn Professor Dr. A. WALTHER danken. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat dankenswerterweise die Kosten für die maschinellen Rechnungen getragen.

Anhang I: Greensche Funktion (10)

MEIXNER¹¹ gibt die Greensche Funktion der Differentialgleichung für die reine Coulomb-Streuung

$$\{\Delta + k^2 - 2k\kappa r^{-1}\} \psi^c = 0 \quad (38)$$

für den Fall, daß der Quellpunkt r' in der durch den Wellenvektor ξ_1 charakterisierten Richtung sehr weit vom Ursprung entfernt liegt, als erstes Glied einer asymptotischen Entwicklung an mit

$$G^c(r, r') \rightarrow -\frac{e^{ikr'} - i\kappa \ln 2kr'}{-4\pi r'} - \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n e^{i\eta_n} y_n^c(kr) P_n(\cos \vartheta) \quad (39)$$

wobei die Funktionen $y_n^c(kr) \cdot P_n(\cos \vartheta)$ die im Ursprung regulären Partikulärlösungen von (38) mit dem asymptotischen Verhalten

$$y_n^c(kr) \rightarrow \frac{1}{kr} \sin \left(kr - \kappa \ln 2kr - \frac{n\pi}{2} + \eta_n \right) \quad (40)$$

sind. Die von uns benutzte Greensche Funktion (10) stellt eine Verallgemeinerung von (39) für den Fall dar, daß in der Differentialgleichung (38) außerdem noch ein stetiges Potential $V(r)$ vorkommt

$$\{\Delta + k^2 - 2k\kappa r^{-1} + V(r)\} \psi = 0 \quad (41)$$

das bei $r=0$ höchstens einen Pol erster Ordnung besitzt und für $r \rightarrow \infty$ mindestens wie r^{-2} verschwindet.

¹¹ MEIXNER, J.: Z. Math. 36, 677 (1932).

Man sieht leicht ein, daß

$$G(r, r') \rightarrow \frac{e^{i k r' - i \pi \ln 2 k r'}}{-4 \pi r'} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) i^n e^{i(\eta_n + \delta_n)} y_n(kr) P_n(\cos \vartheta) \quad (42)$$

die gesuchte Greensche Funktion ist, wenn die Produkte $y_n(kr) \cdot P_n(\cos \vartheta)$ die im Ursprung regulären Lösungen von (41) mit dem asymptotischen Verhalten

$$y_n(kr) \rightarrow \frac{1}{kr} \sin \left(kr - \pi \ln 2kr - \frac{n\pi}{2} + \eta_n + \delta_n \right)$$

sind.

Bezüglich der Abhängigkeit von r stellt (42) ja genau wie (39) die der ebenen Welle entsprechende Lösung dar. Bezüglich r' zeigt es die für das weitreichende Coulomb-Potential charakteristische Verformung der vom Quellpunkt r' ausgehenden Kugelwelle.

Anhang II: Bestimmte Integrale über Kugelfunktionen

Durch Zerlegung von P_2^K und Gebrauch der Rekursionsformeln erhält man

$$\begin{aligned} \int_{-1}^{+1} P_l(x) P_n^K(x) P_2^K(x) dx &= c(n, K, -2) \delta_{l, n-2} + \\ &+ c(n, K, 0) \delta_{l, n} + c(n, K, 2) \delta_{l, n+2} \end{aligned}$$

mit

Tabelle 2

K	$c(n, K, -2)$	$c(n, K, 0)$	$c(n, K, 2)$
0	$\frac{3n(n-1)}{(2n-3)(2n-1)(2n+1)}$	$\frac{2n(n+1)}{(2n-1)(2n+1)(2n+3)}$	$\frac{3(n+1)(n+2)}{(2n+1)(2n+3)(2n+5)}$
1	$\frac{6(n-1)n(n+1)}{(2n-3)(2n-1)(2n+1)}$	$\frac{6n(n+1)}{(2n-1)(2n+1)(2n+3)}$	$\frac{-6n(n+1)(n+2)}{(2n+1)(2n+3)(2n+5)}$
2	$\frac{6(n-1)n(n+1)(n+2)}{(2n-3)(2n-1)(2n+1)}$	$\frac{-12(n-1)n(n+1)(n+2)}{(2n-1)(2n+1)(2n+3)}$	$\frac{6(n-1)n(n+1)(n+2)}{(2n+1)(2n+3)(2n+5)}$

Anhang III: Bestimmte Integrale über Coulomb-Funktionen nach H. Buchholz*

Die Coulomb-Funktionen hängen mit den Konfluenten Hypergeometrischen Funktionen durch die Beziehung¹²

$$F_L(\varrho) = \frac{1}{2} |\Gamma(L+1+ix)| e^{-\frac{\pi}{2}x} (-i)^{L+1} \mathcal{M}_{ix, L+\frac{1}{2}}(2i\varrho)$$

zusammen.

* Auszug aus einer freundlicherweise überlassenen privaten Mitteilung.

¹² BUCHHOLZ, H.: Die Konfluente Hypergeometrische Funktion, S. 215. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1953.

Mit den Definitionen

$$X_3^*(\tau, L, M) = \int_0^\infty \mathcal{M}_{i\tau, L+\frac{1}{2}}(-2it) \mathcal{M}_{i\tau, M+\frac{1}{2}}(-2it) \frac{dt}{t^3}$$

und

$$X_n(\tau, L, M) = \int_0^\infty \mathcal{M}_{i\tau, L+\frac{1}{2}}(-is) \mathcal{M}_{i\tau, L+\frac{1}{2}}(-is) \frac{ds}{s^n} \quad \text{für } n \leq L+M+2$$

wobei außerdem gilt

$$\mathcal{M}_{i\tau, L+\frac{1}{2}}(-2it) = (-1)^{L+1} \mathcal{M}_{-i\tau, L+\frac{1}{2}}(2it)$$

lauten die Ergebnisse

$$X_n(\tau, M, L) = 2^{1-n} X_n^*(\tau, L, M)$$

$$2iL(L+1) X_3(\tau, L, L) = i\tau X_2(\tau, L, L) + X_2(\tau, L, L-1)$$

$$i(2+L+M) X_3(\tau, L, M) = i\tau \frac{L+M}{2LM} X_2(\tau, L, M) + \\ + \frac{1}{2L} X_2(\tau, L-1, M) + \frac{1}{2M} X_2(\tau, L, M-1) \quad \text{für } L \neq M, M \neq \pm 1.$$

Explizit ist

$$X_2(\tau, L, M) = (-i)^{L+M+2} \frac{2e^{-\pi\tau}}{(M-L)(M+L+1)} \times \\ \times \frac{\sin\left(\delta_M - \delta_L + \frac{\pi}{2}(M-L)\right)}{|\Gamma(M+1+i\tau)\Gamma(L+1+i\tau)|} \quad L \neq M$$

und

$$X_2(\tau, L, L) = (-1)^{L+1} \frac{e^{-\pi\tau}}{(2L+1)|\Gamma(L+1+i\tau)|^2} \times \\ \times [\pi - i(\Psi(L+1+i\tau) - \Psi(L+1-i\tau))].$$

Die δ_L sind dabei definiert durch das asymptotische Verhalten der Funktionen

$$\mathcal{M}_{i\tau, \frac{L}{2}}(-is) \Rightarrow A \cdot \cos\left(-\tau \ln|s| - \frac{1}{2}s + \delta_L + \frac{\pi}{4}(1+L) \operatorname{sign} s\right).$$

Für große L läßt sich außerdem annähern

$$\pi - i[\Psi(L+1+i\tau) - \Psi(L+1-i\tau)] \\ \Rightarrow \pi + 2\tau \frac{L+2}{(L+1)^2} \quad \text{für } L+1 \gg |\tau|.$$

From the Department of Physics of the University College of Swansea,
University of Wales, Great Britain

The determination of the Lorenz number at high temperatures

By

M. R. HOPKINS and R. LL. GRIFFITH

(Eingegangen am 25. April 1957)

In a conducting system consisting of a short fine wire carrying a current between two large masses of the same metal, the maximum temperature attained depends only upon the properties of the material and the applied potential difference, provided the heat lost from the surface of the wire is negligible compared with that conducted. Measurement of the maximum temperature as a function of the potential difference allows the ratio of the thermal conductivity λ to the electrical conductivity κ , and hence the Lorenz number $\lambda/\kappa T$ where T is the absolute temperature, to be determined over a wide range of temperature. Experiments with platinum in various gases at atmospheric pressure and also at low gas pressures to test the effect of heat losses due to the surrounding gas are described. Under the conditions of the experiments, these losses are very small except in the case of hydrogen, the results agreeing among themselves and with those previously published.

Values of the Lorenz number for palladium from 1000 to 1550° C are given.

I. Introduction

A method for determining the ratio of the thermal conductivity λ of a conductor to the electrical conductivity κ , as a function of temperature, has been described in a paper by HOPKINS (1957) where references to previous work are given. The method, which is applicable over a wide range of temperature depends upon the use of a general relation between potential and temperature in a conductor. This relation which is of importance in the theory of electrical contacts, is restated here in order to make use of the notation. Consider a short wire joining two large blocks of the same metal. If a potential difference V is maintained between an equipotential surface S_1 in one block and an equipotential surface S_2 in the other, both S_1 and S_2 being at the same temperature ϑ_0 , and if the maximum temperature in the wire is ϑ_m , then

$$\frac{V}{2} = F(\vartheta_0, \vartheta_m) = \left(2 \int_{\vartheta_0}^{\vartheta_m} \frac{\lambda}{\kappa} d\vartheta \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

provided the heat lost from the surface of the wire may be neglected, in which case, equipotential and isothermal surfaces coincide. By

measuring V and ϑ_m together, over a range of values of ϑ_m , λ/κ as a function of temperature may be calculated from

$$F^2(\vartheta_0, \vartheta_m) = 2 \int_{\vartheta_0}^{\vartheta_m} \frac{\lambda}{\kappa} d\vartheta, \quad (2)$$

$$F(\vartheta_0, \vartheta_m) \frac{\partial F(\vartheta_0, \vartheta_m)}{\partial \vartheta_m} = \frac{\lambda}{\kappa} (\vartheta_m). \quad (3)$$

It has been shown by HOPKINS (1957) that in the case of platinum wire 0.5 mm long of diameter 0.0193 cm (36 S.W.G.) the radiation from the surface of the wire has a negligible effect on the temperature distribution. The purpose of the present paper is twofold; firstly, to give the results of experiments carried out on platinum, in air, in nitrogen, in hydrogen at atmospheric pressure and also in gas atmospheres at low pressure $\sim 10^{-2}$ mm Hg (Henceforth these measurements at low gas pressure will be referred to as "measurements *in vacuo*") in order to assess any error introduced by the surrounding atmosphere; and, secondly, to give results of determinations of the Lorenz number $L = \lambda/\kappa T$, where T is the absolute temperature, for palladium. It is shown that the agreement between the results in air, in nitrogen and *in vacuo* is very close, but that in hydrogen significantly higher values of λ/κ for platinum are obtained. This is consistent with the hypothesis that, under the conditions of the experiments, surface losses due to the surrounding atmosphere which can be neglected in the case of air and nitrogen, cannot be neglected in the case of hydrogen. These considerations are of importance in the design of experiments for the investigation of easily oxidizable metals.

II. Experimental arrangement

The method of mounting the wire so as to reproduce as closely as possible the conditions envisaged in the theory of the experiment has been described by HOPKINS (*loc. cit.*), as has also the method of measuring the maximum temperature ϑ_m by optical pyrometry. The wire, about 5 cm long was clamped over nearly 2.5 cm from each end between two pairs of semicylinders of the same metal fitting into accurately machined channels in two pairs of water-cooled blocks, the members of a pair being screwed together. The length of wire exposed between the pairs of blocks was 0.5 mm. In the present experiments the system was fitted on to a horizontal insulating platform screwed on to a heavy steel plate standing in a vertical plane. A glass bell jar, with its axis horizontal, was fitted to the steel plate so as to cover the conducting system, the ground flange of the base of the jar being greased so as to

make a vacuum tight joint with the plate. The heated wire was observed along the axis of the bell jar through an optical flat secured to the open neck of the jar by vacuum wax. Water and vacuum pump connections were made through tubes welded into the steel plate and the electrical connections through insulated plugs screwed into the plate so as to make vacuum tight joints.

III. Results of measurements on platinum, in air, in vacuo, in nitrogen and in hydrogen

The relation between voltage and temperature for platinum from 1200° C to the melting point is

$$F = 0.037 + 1.788 \times 10^{-4} \vartheta_m \quad (4)$$

where $F = V^2/2$, V being the voltage. This is the relation fitted by the method of least squares to the results of measurements on a wire heated in air. The corresponding relations for measurements from 1000° C to the melting point in nitrogen and *in vacuo* respectively are

$$F = 0.041 + 1.771 \times 10^{-4} \vartheta_m \quad (5)$$

and

$$F = 0.040 + 1.769 \times 10^{-4} \vartheta_m \quad (6)$$

whereas the relation between voltage and temperature for measurements in hydrogen from 1000° C to the melting point is

$$F = 0.035 + 1.871 \times 10^{-4} \vartheta_m \quad (7)$$

The only one which differs significantly from the others is (7). The corresponding values of λ/κ and $\lambda/\kappa T$, where T is the absolute temperature, are given in tables 1 and 2.

It is clear from table 2 that there is good agreement between the results of the first three columns of values of $\lambda/\kappa T$, i.e. between the results in air, in nitrogen, and *in vacuo*. The values agree to within just over one per cent, which may be considered to be satisfactory, particularly in view of the fundamental uncertainty of about ten degrees in the calibration of standard pyrometer lamps in this temperature range. This means that the loss of heat from the surface of wires of the size used in the experiments described here is small enough to be neglected when the atmosphere in which the measurements are made is air or nitrogen. This is of importance in practical measurements because it is often desirable and convenient to carry out the experiment in an atmosphere of an inert gas such as nitrogen.

A further check on the values of λ/κ for platinum is provided by the melting voltage, i.e. the voltage which corresponds to the melting point of the metal. This quantity is of importance in the study of electrical

Table 1. *Values of λ/κ as a function of temperature from measurements in air, in nitrogen, in vacuo and in hydrogen. Platinum*

ϑ_m (°C)	$10^7 \lambda/\kappa$ volt ² /degree			
	In air	In nitrogen	In vacuo	In hydrogen
1000		386	383	415
1050		402	399	433
1100		418	414	450
1150		433	430	468
1200	450	449	445	485
1250	466	465	461	503
1300	482	480	477	520
1350	498	496	492	538
1400	514	512	508	555
1450	530	527	524	573
1500	546	543	539	590
1550	562	559	555	608
1600	578	574	571	625
1650	594	590	586	643
1700	610	606	602	660
1750	626	622	618	678

Table 2. *Values of $\lambda/\kappa T$ as a function of temperature from measurements in air, in nitrogen, in vacuo and in hydrogen. Platinum*

ϑ_m (°C)	$10^8 \lambda/\kappa T$ (volt/degree) ²			
	In air	In nitrogen	In vacuo	In hydrogen
1000		3.04	3.01	3.26
1050		3.04	3.01	3.27
1100		3.04	3.02	3.28
1150		3.05	3.02	3.29
1200	3.06	3.05	3.02	3.29
1250	3.06	3.05	3.03	3.30
1300	3.06	3.05	3.03	3.31
1350	3.07	3.06	3.03	3.31
1400	3.07	3.06	3.04	3.32
1450	3.08	3.06	3.04	3.32
1500	3.08	3.06	3.04	3.33
1550	3.08	3.06	3.04	3.33
1600	3.09	3.07	3.05	3.34
1650	3.09	3.07	3.05	3.34
1700	3.09	3.07	3.05	3.35
1750	3.09	3.07	3.05	3.35

contact phenomena (cf. LLEWELLYN JONES 1957) and has been measured in this laboratory by R. H. JONES and C. R. JONES, using methods independent of the experiments described here. The value obtained was

0.71 ± 0.005 volts. The values calculated from the results of table 1 relating to measurements in air, nitrogen and *in vacuo* respectively are 0.708, 0.710 and 0.706. The melting voltage calculated from the measurements in hydrogen is, on the other hand, 0.733.

It is now necessary to consider the results obtained in hydrogen. The theory of the experiment, depending upon the use of the voltage-temperature relation (1), is applicable in the simple form given here only if the heat lost from the surface of the wire is small enough to be neglected. Heat lost by radiation having been shown to be negligible (HOPKINS, loc. cit.), the remaining surface losses are those due to the presence of the surrounding gas atmosphere. If the wire were long, this would be easy to discuss in the light of known expressions for the heat lost from the surface of a heated wire (See, for example, ROBERTS, 1933, Chap. XI). For instance, in the case of a long cylinder in a diatomic gas, the loss of heat by convection, H per unit length, per second, per degree temperature excess, is given by

$$\frac{H}{K} = f\left(\frac{\Theta d^3}{\nu^2}\right),$$

where K is the thermal conductivity of the gas, Θ the temperature excess, d the diameter of the cylinder and ν the kinematic viscosity of the gas. f is an increasing function of its argument and has been determined experimentally. A calculation, using the above relation and the known form of the function f shows that the loss of heat in hydrogen would be approximately seven times that in nitrogen. The higher thermal conductivity of hydrogen is the dominating factor in the case of a wire of diameter 0.0193 cm and a temperature excess of, say, 1600 degrees. The higher kinematic viscosity of hydrogen is comparatively ineffective in reducing H because f is a slowly varying function in the relevant range of the argument. The above relation cannot, of course, be used to calculate the heat lost from a short wire. Calculations, based on the kinetic theory of gases and on the assumptions of a long wire, low gas pressure and small excess temperature show that the heat lost is proportional to the gas pressure and inversely proportional to the square root of the molecular weight of the gas. Although these calculations indicate that surface loss of heat would be negligible at pressures of 10^{-2} mm Hg and that the loss would be greater in hydrogen than in nitrogen, they are not applicable in making quantitative estimates of the actual heat lost in experiments with short wires. The effect of heat losses would be to increase the voltage necessary to maintain a given value of the maximum temperature ϑ_m in the wire. Ignoring this loss of heat would lead therefore to values of λ/κ which are too high. Comparison of the results given in table 1 shows that values of λ/κ measured

in hydrogen, although only 8 to 10% higher than those in air, in nitrogen and in vacuo, are nevertheless significantly higher. The conclusion is that if hydrogen is used, then the theory must be modified in order to take into account the heat lost from the surface of the wire. Measurements in air or nitrogen however, are in sufficiently close agreement with those *in vacuo* to be regarded as satisfactory.

In view of this, the Lorenz number has been determined for palladium in the temperature range 1000° C to 1550° C by carrying out the measurements in an atmosphere of nitrogen. The results are given below.

IV. Results of measurements on palladium

The voltage temperature relation for palladium was calculated from the observations by the method of least squares to be

$$\frac{V}{2} \equiv F = 0.047 + 1.784 \times 10^{-4} \vartheta_m. \quad (8)$$

Table 3. Table showing comparison of the observed values of F and those calculated from the relation (8)

ϑ_m (°C)	F Observed (Volts)	F Calculated	F Obs.-Calc.
1005	0.225	0.226	-0.001
1053	0.233	0.235	-0.002
1134	0.249	0.249	0.000
1211	0.264	0.263	+0.001
1280	0.275	0.275	0.000
1348	0.287	0.287	0.000
1412	0.299	0.299	0.000
1472	0.310	0.310	0.000
1503	0.315	0.315	0.000
1505	0.316	0.315	+0.001

Table 4. Values of F , λ/κ and $\lambda/\kappa T$ as functions of temperature from 1000 to 1550° C.
Palladium

ϑ_m (°C)	F Volts	$\frac{\partial F}{\partial \vartheta_m}$	$10^7 \lambda/\kappa$ volt°/degree	$10^8 \lambda/\kappa T$ (volt/degree) ²
1000	0.225	1.784×10^{-4}	402	3.16
1050	0.234		418	3.16
1100	0.243		434	3.16
1150	0.252		450	3.16
1200	0.261		466	3.16
1250	0.270		482	3.16
1300	0.279		498	3.16
1350	0.288		513	3.16
1400	0.297		529	3.16
1450	0.306		545	3.17
1500	0.315		561	3.17
1550	0.323		577	3.17

Table 3 shows the observed values of L together with those calculated from (8).

Table 4 gives λ/κ calculated from the relation (8) by means of (3), and also $\lambda/\kappa T$ from 1000° C to 1550° C.

Acknowledgements. This work was carried out as part of a programme of research on the physics of electrical contact phenomena under the general direction of Professor F. LLEWELLYN JONES, to whom the authors are grateful for advice and encouragement. Thanks are due to The Royal Society for a grant to purchase the precious metals used in the investigation, and to the Department of Scientific and Industrial Research for a maintenance grant to one of us (R. LL. G.) during the investigation.

References

- HOPKINS, M.R.: *Z. Physik* **147**, 148 (1957). — LLEWELLYN JONES, F.: *The Physics of Electrical Contacts*. Oxford: Oxford University Press 1957. — ROBERTS, J.K.: *Heat and Thermodynamics*. London: Blackie & Son 1933.

Aus dem Physikalisch-Chemischen Institut "L. Ja. Karpow", Moskau, Uliza Obucha 10

Abhängigkeit der Intensität der Raman-Linien von der Frequenz des Erregerlichtes im Resonanzgebiet

Von

P. SCHORYGIN* und L. KRUSCHINSKI

(Eingegangen am 21. Dezember 1957)

An fünf aromatischen Nitroverbindungen wird der Resonanz-Raman-Effekt quantitativ untersucht. Liegt die Erregerlinie in der Nähe einer Absorptionsstelle, so zeigen die experimentell gefundenen Intensitäten der Raman-Linien deutliche Abweichungen vom ν_0^4 -Gesetz, die durch eine halbklassische Theorie erklärt werden können. Jedoch diese Theorie versagt, wenn die Erregerlinie in der Mitte der Absorptionsstelle liegt.

Befindet sich beim Raman-Effekt die Erregerfrequenz ν_0 in großem Abstand von der Frequenz ν_i der Elektronenübergänge, d.h. von einer Absorptionsstelle der bestrahlten Substanz, so gilt für die Intensität der Raman-Linien die Beziehung $I \sim \nu_0^4$. Dies gilt z. B. für Tetrachlorkohlensstoff und Cyclohexan im sichtbaren Bereich des Spektrums. Dagegen wird beobachtet, daß die Intensität der Raman-Linien von Zwei- und Dreifachbindungen schon bei Erregung im sichtbaren Bereich des Spektrums viel schneller anwächst, als nach dem ν_0^4 -Gesetz zu erwarten wäre¹. Dies hängt offenbar damit zusammen, daß die Ableitung der Polarisierbarkeit des Moleküls nach den Normalkoordinaten q_j , die in den theoretischen Ausdruck für die Intensität eingeht, mit steigender Erregerfrequenz ν_0 anwächst.

Wenn man für die Polarisierbarkeit α des Moleküls den Ansatz

$$\alpha = \text{const} \sum_i \frac{f_i}{\nu_i^2 - \nu_0^2}$$

macht, wobei f_i die Oszillatorenstärke bedeutet, die dem Elektronenübergang $0 \rightarrow i$ entspricht, so gilt nach der halbklassischen Rechnung für den Raman-Effekt

$$\frac{\partial \alpha}{\partial q_j} = \text{const.} \sum_i \left\{ \frac{1}{\nu_i^2 - \nu_0^2} \frac{\partial f_i}{\partial q_j} - \frac{2\nu_i f_i}{(\nu_i^2 - \nu_0^2)^2} \frac{\partial \nu_i}{\partial q_j} \right\}.$$

Auf dieselbe Weise können dann die Gleichungen für die einzelnen Komponenten des Tensors aufgestellt werden.

* Vorgetragen auf der Internationalen Tagung der europäischen Molekülspektroskopiker in Freiburg i. Br. am 12. 7. 57.

¹ Siehe z.B. BEHRINGER, J., u. J. BRANDMÜLLER: Z. Elektrochem. **60**, 643 (1956).

Um eine Erklärung für die einzelnen Glieder und Faktoren dieser Intensitätsbeziehung zu finden, wurde die Abhängigkeit der Intensität von der Erregerfrequenz untersucht.

Dabei wurde in der vorliegenden Arbeit die Frequenzabhängigkeit der integrierten Intensität der Raman-Linie der symmetrischen Valenzschwingung der Nitro-Gruppe einer Reihe farbiger aromatischer Verbindungen bei der Erregung im sichtbaren Bereich des Spektrums untersucht. Die Erregerfrequenz ν_0 lag dabei in der Mitte, nahe der Mitte oder am Rande einer intensiven Absorptionsbande. Es zeigte sich, daß diese der Erregerfrequenz am nächsten gelegene Absorptionsbande offenbar eine dominierende Wirkung besitzt, so daß weiter entfernte Banden hier unberücksichtigt bleiben konnten.

Diese Nitroverbindungen wurden in Form von Lösungen in Cyclohexan oder Methanol untersucht. Als inneres Etalon wurden die Linien des Cyclohexans 1265 und 1442 cm^{-1} und die Linien des Methanols 1028 und 1460 cm^{-1} verwendet. Dabei wurde vorausgesetzt, daß die Intensitäten der erwähnten Etalon-Linien im wesentlichen dem ν_0^4 -Gesetz gehorchen. Die Intensitätsmessungen wurden mit Hilfe der Methode der photographischen Photometrie vorgenommen.

In der Tabelle 1 sind die gemessenen Intensitätsverhältnisse der totalsymmetrischen NO_2 -Linie einzelner Verbindungen bei Erregung des Raman-Spektrums durch die Quecksilberlinien c , e und k ausgewertet. ($\tilde{\nu}_c = 18307\text{ cm}^{-1}$, $\tilde{\nu}_e = 22938\text{ cm}^{-1}$ und $\tilde{\nu}_k = 24705\text{ cm}^{-1}$.) Die Intensitäten sind entsprechend mit I_c , I_e und I_k bezeichnet.

Die Zahlen der 2. und 3. Spalte zeigen um wieviel mal schneller die Intensität der NO_2 -Linie beim Übergang von der Erregerlinie ν_c zu ν_e bzw. von ν_e zu ν_k wächst, als es aus dem ν_0^4 -Gesetz zu erwarten wäre (in den Berechnungen haben wir größere Genauigkeit anstrebbend in die Formel nicht $\tilde{\nu}_0^4$, sondern $(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4$ eingeführt, wobei $\tilde{\nu}_{\text{NO}_2}$ die Wellenzahl der NO_2 -Schwingung bedeutet, die ungefähr 1300 cm^{-1} ist). In den darauf folgenden Spalten sind die Abweichungen vom ν_0^4 -Gesetz angeführt, die nach den Formeln

$$I \sim (\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4 (\tilde{\nu}_i^2 - \tilde{\nu}_0^2)^{-2}$$

und

$$I \sim (\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4 (\tilde{\nu}_i^2 - \tilde{\nu}_0^2)^{-4}$$

berechnet worden sind, wobei $\tilde{\nu}_i$ die Lage der Absorptionsstelle bedeutet. Wie ersichtlich ergeben die Berechnungen nach der ersteren Formel eine schlechte Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten, da in der Tat die Intensität mit steigendem $\tilde{\nu}_0$ viel rascher anwächst. Dagegen ergeben die Berechnungen nach der zweiten Formel eine befriedigendere Übereinstimmung mit dem Experiment unter der Bedingung, daß die Differenz $\tilde{\nu}_i - \tilde{\nu}_0$ im Bereich von 300 bis 20000 cm^{-1} bleibt. Bei weiterer

Tabelle 1. Abweichungen vom Verhältnis $I \sim \nu_0^4$

Verbindungen	Experimentelle Größen		Berechnet nach Formel		Berechnet nach Formel	$\tilde{\nu}_k$ cm ⁻¹	$\tilde{\nu}_k - \tilde{\nu}_0$ cm ⁻¹
	$\frac{I_0}{I_e} \left(\frac{\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2}}{\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2}} \right)^4$	$\frac{I_k}{I_e} \left(\frac{\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2}}{\tilde{\nu}_k - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2}} \right)^4$	$I \sim \frac{(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4}{(\tilde{\nu}_k^3 - \tilde{\nu}_0^3)^2}$	$I \sim \frac{(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4}{(\tilde{\nu}_k^3 - \tilde{\nu}_0^3)^2}$	$I \sim \frac{(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu}_{\text{NO}_2})^4}{(\tilde{\nu}_k^3 - \tilde{\nu}_0^3)^2}$		
p-Nitrotoluol in Cyclohexan	2,0	1,6	1,4	1,2	2,1	38000	c 19700 e 15800 h 13300
p-Nitroanisol in Methanol	2,7	1,5	1,6	1,3	2,8	34200	c 15900 e 12000 h 9500
p-Nitroanilin in Methanol	11	7,3	3,8	2,9	14	27000	c 8700 e 4800 h 2300
p-Nitrodimethylanilin in Methanol .	38	2,2	5,8	7,0	34	25700	c 7400 e 3500 h 1000
p-Nitrodiäthylanilin in Methanol .	46	1,8	8,4	44	71	25000	c 6700 e 2800 h 300

Annäherung der Erregerfrequenz ν_0 an die Absorptionsstelle ν_i wird experimentell eine Verlangsamung des Anwachsens der Intensität beobachtet, die man dem Einfluß der Dämpfung der Elektroneneigenschwingung zuschreiben kann. Die Ergebnisse deuten darauf hin, daß in der vorher erwähnten halbklassischen Gleichung für die Intensität dem 2. Glied, in das die Ableitung $\partial r_i / \partial q_i$ eingeht, eine dominierende Bedeutung zukommt. Die Abweichungen des Experimentes von der Theorie können zu einer annähernden Abschätzung der Dämpfungskonstante verwendet werden. Die Breite der Absorptionsbanden widerspricht dabei nicht den aus den Versuchsergebnissen gewonnenen Werten.

Liegt die Erregerfrequenz in der Mitte der Absorptionsbande, so ergibt die halbklassische Formel auch bei Berücksichtigung der Dämpfung keine Übereinstimmung mit dem Versuch. Es sei jedoch bemerkt, daß in diesem Bereich eine annähernde Proportionalität zwischen der Linienintensität und dem Absorptionskoeffizienten beobachtet wird.

Grob abgeschätzt hat die Ableitung der Polarisierbarkeit nach dem Kernabstand der NO-Bindung für p-Nitroanilin in Methanol und der Erregerfrequenz Hg-e einen Wert von 200 \AA^2 . Ebenso ergibt sich für die Ableitung etwa $-20000 \text{ cm}^{-1}/\text{\AA}$. Diese Größen erscheinen durchaus möglich bei Veränderung des Gleichgewichtsabstandes zwischen N und O durch Elektronenänregung um 0,03 bis 0,1 \AA .

Aus dem Institut für Experimentalphysik der Universität Kiel

Quantitative Messung des 3^3P -Seriegrenzkontinuums von Mg

Von

WOLDEMAR BÖTTICHER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. September 1957)

Das bei $\lambda = 2514 \text{ \AA}$ beginnende Seriegrenzkontinuum von Magnesium, das an den Term 3^3P anschließt, wird unter definierten Verhältnissen, d.h. bei bekannter Temperatur und Elektronendichte, in Emission erzeugt. Für dieses Kontinuum wird der Absolutwert des Absorptionskoeffizienten κ_ν an der Seriegrenze sowie der Abfall des Kontinuums quantitativ bestimmt. Die Regel von INGLIS und TELLER über den Zusammenhang zwischen der Hauptquantenzahl der letzten getrennt beobachtbaren Linie einer Serie und der Konzentration der Störteilchen läßt sich mit guter Genauigkeit anwenden.

Einleitung

Die Kenntnis des Absorptionskoeffizienten der Seriegrenzkontinua von Magnesium ist für die Astrophysik von Interesse, da Magnesium wegen seiner relativen Häufigkeit einen merklichen Beitrag zum kontinuierlichen Absorptionskoeffizienten der stellaren Materie liefert¹. Die Möglichkeit einer genaueren Berechnung dieser Absorption mit den Hilfsmitteln der Wellenmechanik scheint jedoch nicht sehr groß zu sein². Ebenso wenig kann man erwarten, daß die von A. UNSÖLD³ angegebene wasserstoffähnliche Abschätzung für Magnesium brauchbare Resultate liefert, da der Term 3^3P als Grundterm des Triplettsystems auch nicht angenähert wasserstoffähnlich ist.

Messungen über die kontinuierliche Absorption der höheren Quantenzustände von Metallen liegen offenbar bis heute nicht vor. Der Grund hierfür dürfte darin zu suchen sein, daß die Seriegrenzkontinua der Nebenserien bisher nur in vereinzelten Fällen und unter erheblichem experimentellen Aufwand zu erhalten waren.

Experimentelle Möglichkeiten der Beobachtung des 3^3P -Kontinuums von Magnesium

Das Seriegrenzkontinuum der Magnesiumhauptserie ist von G. V. MARR und R. DITCHBURN⁴ in Absorption untersucht worden. Die

¹ UNSÖLD, A.: Physik der Sternatmosphäre, 2. Aufl., Abschn. 50.

² TREFFTZ, E.: Z. Astrophys. **28**, 78 (1951).

³ UNSÖLD, A.: l. c. Gl. (47.1).

⁴ MARR, G. V., u. R. DITCHBURN: Proc. Phys. Soc. Lond. A **66**, 655 (1953).

von diesen Autoren benutzte Untersuchungsmethode versagt jedoch bei den Nebenserien, da für diese eine höhere Temperatur des Absorptionsrohres notwendig ist, um neben einem genügend hohen Dampfdruck auch eine ausreichende Besetzung des 3^3P -Terms zu erhalten. Dabei macht sich die Aggressivität von Magnesium bei höheren Temperaturen außerordentlich störend bemerkbar.

Aus diesen Gründen wird man versuchen, das Nebenserien­grenzkontinuum in Emission zu erhalten. Zur Erzeugung der hierfür erforderlichen hohen Temperaturen bietet sich ein Lichtbogen an. Messungen der Serien­grenzkontinua von Erdalkalien speziell von Magnesium mit Hilfe von Lichtbögen sind indessen nicht bekannt geworden. Offenbar ist es schwierig, in einem Lichtbogen genügend großen Magnesiumdampfdruck aufrecht zu erhalten. Letzterer ist für die Erzeugung von Serien­grenzkontinua wesentlich, wie man aus folgender Überlegung entnimmt:

Bei Emission aus optisch dünner, homogener Schicht ist die Kontinuumsintensität I_ν gegeben durch

$$I_\nu = \kappa_\nu n_0 \frac{g_1}{u_0} \cdot B_\nu(T) e^{-\frac{E_1}{kT}}. \quad (1)$$

Dabei bedeutet

- κ_ν den Absorptionskoeffizienten pro Atom,
- g_1, E_1 das statistische Gewicht bzw. die Anregungsenergie des 3^3P -Terms,
- n_0 die Magnesiumteilchendichte,
- u_0 die Zustandssumme von Magnesium,
- $B_\nu(T)$ die Kirchhoff-Planck-Funktion.

Unter Verwendung der Saha-Gleichung

$$\frac{n_i n_e}{n_0} = \frac{u_i \cdot 2}{u_0} \frac{(2\pi m k T)^{\frac{3}{2}}}{h^3} e^{-\frac{E_i}{kT}}, \quad (2)$$

- n_i, u_i die Teilchendichte bzw. die Zustandssumme von Mg^+ ,
- E_i die Ionisierungsenergie von Mg,
- m, k, h die bekannten Naturkonstanten,
- T die Temperatur,

kann man n_0 aus Gl. (1) eliminieren. Man erhält so

$$I_\nu = n_i n_e T^{-\frac{3}{2}} \cdot e^{-\frac{E_{kin}}{kT}} \cdot \nu^3 \cdot \text{Konst.} \quad (3)$$

Dabei wurde in $B(T)$ der Faktor $(e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1)^{-1}$ durch die Wiensche Näherung ersetzt und die Beziehung $h\nu = E_i + E_{kin} - E_1$ eingesetzt. Da an

der Seriegrenze $E_{\text{kin}}=0$ ist, gilt dort

$$I_v = \kappa_v n_i n_e T^{-\frac{1}{2}} \cdot \text{Konst.} \quad (4)$$

Die Temperaturabhängigkeit von I_v ist danach im wesentlichen durch diejenige von $n_i n_e$ bestimmt. Man erhält also ein Maximum von I_v bei etwa vollständiger einfacher Ionisation von Magnesium. Falls dann die zweifache Ionisation noch nicht wesentlich ist, gilt angenähert

$$\frac{p}{h T} = n_i + n_e = 2n_i \quad (p \text{ ist der Gasdruck}). \quad (4a)$$

Das heißt aber: ein Plasma, das ein intensives Grenzkontinuum emittieren soll, muß eine Temperatur haben, bei der die erste Ionisation nahezu vollständig ist, die zweite Ionisation aber noch nicht begonnen hat. Bei dieser Temperatur ist die Kontinuumsintensität durch den Dampfdruck von Magnesium bestimmt. Man entnimmt Gl. (4) und (4a) das $I_v \sim p^2$ ist.

Auf Grund dieser Überlegung erschien es am aussichtsreichsten eine Entladung zu verwenden, bei der der in einem evakuierten Gefäß über einer Schmelze entstehende Magnesiumdampf als Träger einer stromstarken Entladung dient. Längere Vorversuche führten auf das im folgenden beschriebene Entladungsgefäß.

Konstruktion und Betrieb der Lichtquelle

Das Entladungsgefäß Fig. 1 besteht aus einem starkwandigen, einseitig verschlossenen Eisenrohr, dessen offenes oberes Ende mit Wasser gekühlt wird. Das Rohr steht senkrecht in einem elektrischen Ofen, der bis auf 1100°C erhitzt werden kann. In dieses vakuumdichte Außenrohr wird ein Rohr aus gesintertem Al_2O_3 (Degussit Al 23) eingeschoben, in dessen unterem Ende die Entladung brennt. Das Eisenrohr, das dieses Degussitrohr hält, erfüllt mehrere Aufgaben: Es verhindert, daß der vom Boden aufsteigende Magnesiumdampf seitlich entweicht, es sorgt durch gute Wärmeleitung dafür, daß bei äußerer Heizung die Entladungsstrecke der heißeste Teil der Apparatur ist, und es trägt das als Kathode dienende Molybdänröhrchen*. Um mit Sicherheit zu verhindern, daß in der Entladungsstrecke Magnesium kondensiert, wurde die Temperaturverteilung im Ofen so beeinflußt, daß die Außenwand des Entladungsgefäßes in Höhe der Entladungsstrecke am stärksten geheizt wurde. Eine Kondensation von Magnesium in der Entladungsstrecke oder auf den Elektroden ist unerwünscht, da sonst der Dampfdruck des Magnesiums beim Einsetzen der Entladung geändert wird. Der aus der Entladungsstrecke entweichende Magnesiumdampf kondensierte sich im

* Die Molybdänelektroden wurden freundlicherweise von der Firma Osram, Berlin, zur Verfügung gestellt.

oberen Teil des Degussitrohres. Diese Kondensation begrenzte die Zeit, die für Spektralaufnahmen zur Verfügung stand, da sorgfältig darauf geachtet werden mußte, daß durch fortschreitende Verengung des Rohrquerschnittes keine Vignettierung der Abbildung entstand. Der Abfall des Magnesiumdampfdruckes vom Druck über der Schmelze bis zu dem verschwindenden Druck in der Kondensationszone verteilt sich nicht gleichmäßig über die Zwischenstrecke, vielmehr bewirkt ein Einsatz im Anodenröhrchen, der den Querschnitt auf einen Schlitz von $1 \times 5 \text{ mm}^2$ einengt*, daß der größte Teil des Druckabfalls oberhalb der Entladungszone stattfindet. Die Querschnittsverengung des äußeren Eisenrohres unterhalb der Wasserkühlung dient als Wärmeleitungswiderstand und verlegt die Kondensationszone weiter nach oben. Die Einzelheiten der Anbringung des Fensters, des Pumpstutzens und der Stromzuführung können Fig. 1 entnommen werden. Das Thermoelement zeigt die Temperatur der Magnesiumsschmelze an. Man kann aus dieser Temperatur allerdings nicht auf den Magnesiumdampfdruck schließen, da es unsicher ist, ob sich in der gegebenen Anordnung der Sättigungsdruck einstellt. Die gemessene Temperatur dient nur als Anhaltspunkt für die Betriebsbereitschaft der Apparatur.

Wegen der begrenzten thermischen Belastbarkeit der Elektroden und vor allem des Degussitrohres war es nicht möglich, in der Entladungsstrecke einen Gleichstrombogen zu brennen. Daher wurden Stromimpulse von etwa 10 msec Dauer mit einem Impulsabstand von 3 sec verwendet. Die Stromstärke betrug etwa 40 Amp. Da zur Erzielung einer ausreichenden Plattenschwärzung 20 Impulse benötigt wurden, mußte dafür gesorgt werden, daß die Stromimpulse reproduzierbar waren. Ebenso mußte die Stromstärke während eines

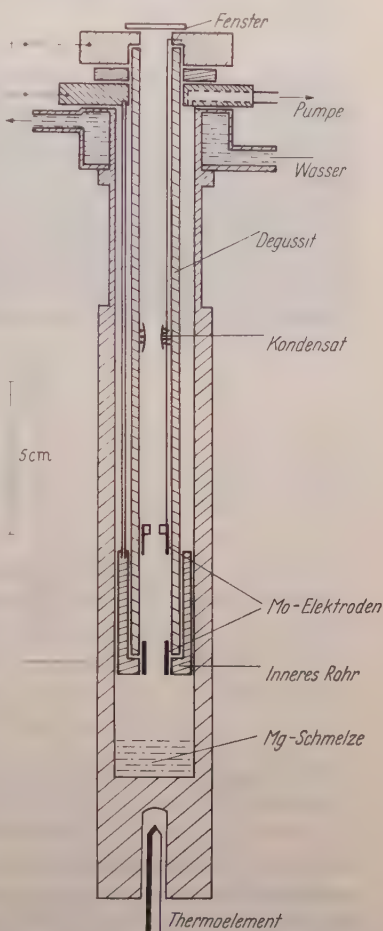


Fig. 1. Das Entladungsgefäß. Das Gefäß steht bis zum Kühlmantel in einem elektrisch geheizten Ofen. Zur Funktion vgl. den Text

* Ähnliche Konstruktionsprinzipien finden sich bei MARR und DITCHBURN l. c.

Impulse möglichst konstant gehalten werden. Die hierfür benutzte Schaltung zeigt Fig. 2.

Aus einem Netzteil wird der Kondensator C_I aufgeladen. Bei einer Spannung, die vom Magnesiumdampfdruck in der Entladungsstrecke abhängt, zündet in dieser eine Glimmentladung. Trotzdem steigt die Spannung an C_I weiter bis das

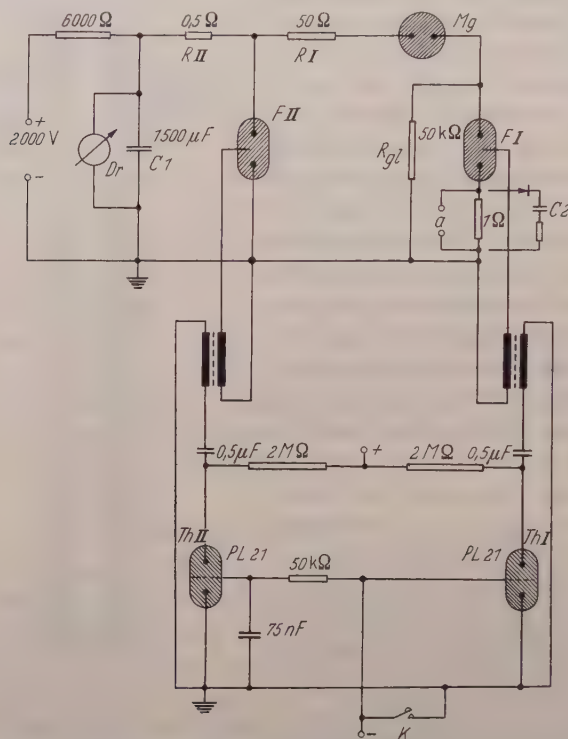


Fig. 2. Die Schaltung des Entladungsstromkreises. R_{gI} Widerstand, der die Zündung der Glimmentladung ermöglicht. R_J Widerstand, der die Impulsstromstärke von 40 Amp bestimmt. Für die übrigen Bezeichnungen und die Funktion vgl. den Text

Drehspulrelais Dr anspricht und den Kontakt K schließt. Zu diesem Zeitpunkt zündet das Thyatron Th I und durch das RC -Glied verzögert auch Th II. Das erste Thyatron liefert über eine Zündspule die Trigger-Spannung für die Schaltfunkenstrecke F I. Diese wird leitend und der Strom in der Magnesiumentladung steigt auf 40 Amp. Wenn dann F II leitend wird, erlischt die Magnesiumentladung, C_I wird entladen und der Vorgang wiederholt sich. Die Glimmentladung verhindert eventuell auftretende Zündverzögerungen beim Einsetzen der Impulse. Der Widerstand R_{II} begrenzt den Strom durch F II auf 4000 Amp. Die Schaltfunkenstrecken wurden in Luft bei einem Druck von etwa 100 mm Hg betrieben.

Zur Prüfung der Konstanz der Impulse wurden diese entweder oszillographisch* beobachtet (Fig. 3), (dann konnte getrennt Impuls-

* Für die Bereitstellung des Oszillographen und der photographischen Einrichtung dankt der Verfasser der Deutschen Forschungsgemeinschaft.

höhe und -länge bestimmt werden) oder die Aufladung des Kondensators C_2 wurde mit einem Röhrenvoltmeter gemessen. Letztere ist proportional $\int I dt$.

Um zu verhindern, daß das Licht der Glimmentladung sich dem interessierenden Spektrum überlagert, erfolgt die Impulsauslösung nicht durch das Drehstromrelais direkt. Dieses steuerte vielmehr ein größeres Relais, auf dessen Anker ein „Winker“ befestigt war, der den Spektrographenspalt erst unmittelbar vor der Impulsauslösung freigab.

Die spektroskopische Technik

Die durch Anodenschlitz und Fenster austretende Strahlung wurde mit einem Einprismenspektrographen aufgenommen. Dabei konnte in einem Bereich von 180 mm das Spektrum von 6000 bis 2100 Å erfaßt werden. Allerdings waren die Linien oberhalb 3400 Å durch die Doppelbrechung im Prisma (Cornuprisma) unscharf oder doppelt. Die Dispersion nahm von 24,8 Å/mm bei $\lambda = 3340$ Å auf 10 Å/mm bei $\lambda = 2500$ Å zu.

Da zur Aussonderung des benötigten Spektralbereiches ($\lambda = 2800$ bis 2200 Å) geeignete Filter nicht vorhanden waren, wurden die Schwärzungsmarken mit dem gleichen Spektrographen durch Intensitätsabstufung eines gleichmäßig ausgeleuchteten Spektrums erzeugt. Dabei wurde ein sechsstufiges Platinstufenfilter verwendet, dessen Durchlässigkeit im gesamten Wellenlängengebiet bekannt war.

Zur Ermittlung absoluter Intensitäten diente das Spektrum eines Normalstrahlers (Graphitbogen nach EULER⁵).

Um die Abhängigkeit der Plattenschwärzung von der Verteilung der Belichtungszeit (Schwarzschilde exponent, Intermittenseffekt u. a.) zu eliminieren, wurden die Stufen und das Normalspektrum in genau derselben Weise wie das Magnesiumspektrum belichtet (20 Impulse von 10 msec Dauer im Abstand von 3 sec). Endlich war es erforderlich, das im UV stark störende Streulicht aus dem sichtbaren Bereich klein zu halten. Dies ließ sich durch Ablendung des Normalspektrums bis auf eine Höhe von 2 mm erreichen. Das Streulicht war dann so schwach, daß es auf den Aufnahmen nicht mehr festgestellt werden konnte. Die Stufen wurden bei einer Spaltbreite von 0,5 mm mit dem Licht einer Hg-Hochdrucklampe aufgenommen.

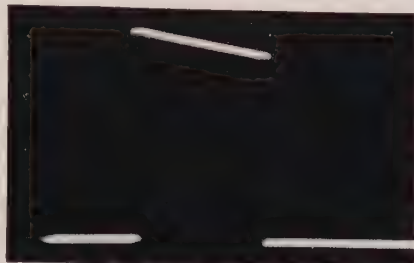


Fig. 3. Oszillogramm des Entladungsstromes. Impulslänge: 10 msec; Impulshöhe: 40 Amp; Stromabfall: 12% vom Anfangswert

⁵ EULER, J.: Ann. d. Phys. **11**, 203 (1953).

Als Aufnahmematerial dienten Hauff-Prozeßplatten. Sie erschienen besonders geeignet, da ihre Empfindlichkeit oberhalb 5000 Å sehr klein ist (Streulicht!) bei relativ großer Empfindlichkeit im UV. Entwickelt wurde in Rodinal 1:100, 20 min lang bei 20° C und dauernder Bewegung. Die Aufnahmen sind sehr feinkörnig und erfassen im UV einen sehr großen Intensitätsbereich ($W=170$ bis $W=-130$ entspricht hier $\Delta \log I=2,7$).

Die Photometrierung erfolgt teils mit einem im Institut gebauten Registrierphotometer, teils mit einem Zeißschen Schnellphotometer*.

Die Abbildung der Entladungsstrecke bzw. des Normalstrahlers erfolgte über einen Kugelspiegel ($f=1100$ mm) im Verhältnis 1:1 auf den Spektrographenspalt. Das Öffnungsverhältnis war bei der Magnesiumentladung 1:84 und beim Normalstrahler 1:30. Alle Belichtungszeiten wurden oszillographisch kontrolliert, so daß absolute Intensitätsmessungen durchgeführt werden konnten.

Ein Teil des Magnesiumspektrums ließ sich, um den erfaßten Intensitätsbereich zu vergrößern, durch ein Filter schwächen. Das Filter bestand aus einer auf Quarz aufgedampften Goldschicht. Seine Durchlässigkeit wurde ebenfalls mit dem Spektralphotometer gemessen.

Durch Photometrierung entsprechender Stellen im geschwächten und ungeschwächten Teil des Spektrums ließ sich ebenfalls eine Schwärzungskurve ableiten. Man hat hierbei den Vorteil, die „Stufen“ automatisch mit denselben Belichtungsbedingungen und an derselben Plattenstelle wie das zu untersuchende Spektrum aufgenommen zu haben. Außerdem braucht man einen wesentlich kleineren Teil der Spalthöhe gleichmäßig auszuleuchten als bei dem üblichen Verfahren.

Die Auswertung der Spektren

Die Emission einer homogenen leuchtenden Schicht mit dem Absorptionskoeffizienten κ_ν und der Dicke l ist bei thermischem Gleichgewicht und der Temperatur T gegeben durch

$$I_\nu = (1 - e^{-\tau_\nu}) B_\nu(T) \quad (5)$$

$\tau_\nu = \kappa_\nu \cdot l$ ist die optische Schichtdicke. Findet man im Spektrum Stellen, bei denen $\tau_\nu \gg 1$ ist (optisch dicke Schicht), so ist dort $(1 - e^{-\tau_\nu}) = 1$. Dieser Fall liegt beim Resonanzdublett des Mg II-Spektrums vor. Wir setzen daher in Gl. (5) $I_\nu = B_\nu$ und ermitteln mit dem jetzt bekannten B_ν bei anderen Wellenlängen die optische Schichtdicke.

Dem hinter der Seriengrenze bei $\lambda = 2514$ Å beginnenden 3^3P -Kontinuum sind die Seriengrenzkontinua aller höheren Zustände von Magnesium und das frei-frei-Kontinuum überlagert. Bezeichnet man mit κ_ν

* Auch für die Überlassung des Schnellphotometers schuldet der Verfasser der Deutschen Forschungsgemeinschaft Dank.

den gemessenen Absorptionskoeffizienten pro Atom im Grundzustand, so ist

$$\kappa_{\nu} n_0 = \kappa_{\nu,1} n_1 + \kappa_{\nu,2} n_2 + \dots = \kappa_{\nu,1} n_1 \left(1 + \frac{\kappa_{\nu,2} n_2}{\kappa_{\nu,1} n_1} + \dots \right). \quad (6)$$

Hier ist $\kappa_{\nu,i}$ der Absorptionskoeffizient pro Atom im Zustand E_i und n_i die Teilchendichte dieser Zustände. Das stärkste überlagerte Kontinuum schließt an den Term 3^1P an. Nehmen wir an, daß $\kappa_{\nu}(3^1P)$ bei $\lambda = 2514 \text{ \AA}$ noch genau so groß ist wie $\kappa_{\nu}(3^3P)$, so wird doch wegen der verschiedenen Besetzungszahlen der betreffenden Zustände bei der gemessenen Temperatur von 6800° K der zweite Summand in der Klammer von Gl. (6) um den Faktor 10^2 kleiner. Da die übrigen Kontinua und die frei-frei-Übergänge sicher nicht stärker sind, wird hier der gemessene Absorptionskoeffizient ganz dem 3^3P -Kontinuum zugeordnet. Für die optische Schichtdicke hinter der Seriengrenze gilt dann

$$\tau_{\nu, \text{Kont}} = \kappa_{\nu}(3^3P) n(3^3P) l.$$

Zur Bestimmung von $n(3^3P)l$ verwenden wir das Triplet $3^3P - 5^3S$ bei $\lambda = 3338 \text{ \AA}$. Ist f_{3338} die Oszillatorenstärke dieses Triplets, so gilt

$$\int \tau_{\nu} d\nu = \frac{\pi e^2}{mc} f_{3338} n(3^3P) l.$$

Man mißt also zunächst das Verhältnis

$$\frac{\kappa_{\nu}}{f_{3338}} = \frac{\tau_{\nu, \text{Kont}}}{\int \tau_{\nu} d\nu} \frac{\pi e^2}{mc}$$

bei Kenntnis der Oszillatorenstärke f_{3338} kann dann auch der Absolutwert von κ_{ν} ermittelt werden. Die f -Werte von stärkeren Mg I-Linien sind von L. BIERMANN und E. TREFFTZ⁶ berechnet worden. Leider sind diese Linien aber hier gerade wegen ihrer Stärke mit so großer Selbstabsorption behaftet, daß sie für eine Bestimmung der optischen Schichtdicke nicht in Betracht kommen.

Man kann aber die von KERSTEN und ORNSTEIN⁷ an Mg I-Linien gemessenen Relativwerte von $A \cdot g_0$ (A Übergangswahrscheinlichkeit, g_0 statistisches Gewicht des oberen Zustandes) durch Vergleich mit den von TREFFTZ und BIERMANN berechneten Werten in Absolutwerte umrechnen.

Mit dem Umrechnungsfaktor

$$\frac{(A g_0)_{\text{gem}}}{(A g_0)_{\text{rel}}} = 4,07 \cdot 10^6$$

erhält man für die interessierende Oszillatorenstärke des Triplets $3^3P - 5^3S$ den Wert*

$$f_{3338} = 1,85 \cdot 10^{-2}.$$

* Um die Zuverlässigkeit der von KERSTEN-ORNSTEIN gemessenen Relativwerte beurteilen zu können, wurden nach BATES und DAMGAARD die relativen Oszillatorenstärken der Triplets $3^3P - 4^4S$, 5^3S , 6^3S berechnet. Es zeigte sich, daß die Abweichungen 10% nicht übersteigen. Allerdings liegen die Absolutwerte gegenüber den Rechnungen von TREFFTZ-BIERMANN etwa um einen Faktor zwei zu niedrig.

⁶ BIERMANN, L., u. E. TREFFTZ: Z. Astrophys. 26, 213, 240 (1949).

⁷ KERSTEN, J. A. H., u. L. S. ORNSTEIN: Physica, Haag 8, 1124 (1941).

Die zur Nachprüfung der Regel von INGLIS-TELLER nötige Bestimmung der Elektronendichte n_e (bzw. der gleichgroßen Ionendichte n_i) erfolgte durch Absolutmessung der Intensität des Mg II-Dubletts 3^2P-4^2S bei $\lambda = 2928 \text{ \AA}$. Seine Oszillatorenstärke wurde nach BATES und DAMGAARD⁸ berechnet. Man erhält $f_{2928} = 0,13$. Es ist anzunehmen, daß dieser Wert mit einem Fehler von höchstens 30% behaftet ist, da Mg II als Einelektronensystem die Voraussetzungen zur Anwendung der Rechenmethode recht gut erfüllt. Auch zeigt ein Vergleich der nach BATES und DAMGAARD berechneten Oszillatorenstärke des benachbarten Überganges 3^2P-3^2D mit der Rechnung von L. BIERMANN und LÜBECK⁹ nur eine Abweichung von 2%, woraus ebenfalls auf einen kleinen Fehler des oben errechneten f -Wertes geschlossen werden kann.

Ergebnisse

Der Absorptionskoeffizient κ_ν an der Seriengrenze ($\lambda = 2514 \text{ \AA}$) ergibt sich unter Benutzung des f -Wertes $f_{3338} = 1,85 \cdot 10^{-2}$ zu

$$\kappa_\nu = 4,5 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2.$$

Der Fehler der Relativmessung $\kappa_\nu:f$ beträgt etwa 10%. Diese Fehlergrenze ist nicht zu optimistisch, da das Intensitätsverhältnis Linie: Kontinuum nur schwach temperaturabhängig ist und praktisch nur die Fehler der photographisch-photometrischen Methode wirksam werden.

Der relative Verlauf des Absorptionskoeffizienten ist in Fig. 4 wiedergegeben. Es ergibt sich

$$\kappa_\nu \sim \nu^{-14}.$$

Diese Messung ist etwas genauer als die Relativmessung $\kappa_\nu:f$, da die Temperaturempfindlichkeit noch kleiner ist.

Für die in Fig. 4 dargestellten Kurven wurde die Ionendichte n_i bzw. die ihr gleiche Elektronendichte n_e wie angegeben aus der Absolutintensität der Mg II-Linie $\lambda = 2928 \text{ \AA}$ bestimmt. Für die beiden Kurven *a* und *b* ergab sich bei

$$a \quad \log n_i = 16,02$$

und

$$b \quad \log n_i = 15,85.$$

Unabhängig von dieser n_e -Bestimmung wurde nun versucht, nach der von INGLIS und TELLER¹⁰ angegebenen Formel

$$\log N = 23,26 - 7,5 \log n_{\max}$$

⁸ BATES, D. R., u. A. DAMGAARD: Phil. Trans. Roy. Soc. Lond., Ser. A **242**, 101 (1949).

⁹ BIERMANN, L., u. K. LÜBECK: Z. Astrophys. **25**, 325 (1948).

¹⁰ INGLIS, D. E., u. R. TELLER: Astrophys. J. **90**, 439 (1939).

aus der Hauptquantenzahl n_{\max} der letzten beobachteten Linie die Anzahl der Störteilchen N zu berechnen. In unserem Fall ist nach INGLIS und TELLER die Verbreiterung durch Elektronen noch wirksam und $N = n_i + n_e$ zu setzen. Mit n_{\max} 8,5 bzw. 9,2 ergeben sich dann genau die Werte der oben auf andere Weise bestimmten Elektronendichte. Allerdings könnte man aus den Kurven a und b auch ein um eine halbe Quantenzahl größeres n_{\max} ablesen. Dies führt hinsichtlich der Bestimmung von n_e zu einer Unsicherheit von etwa 0,3 in $\log n_e$, d.h. die Elektronendichte läßt sich etwa auf einen Faktor zwei genau angeben.

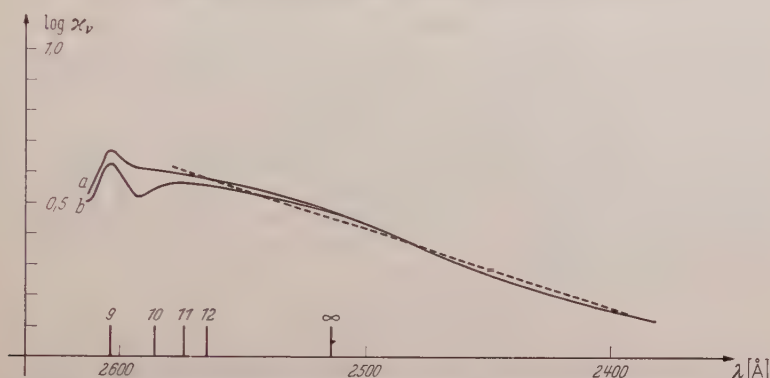


Fig. 4. Gemessener Verlauf des Absorptionskoeffizienten κ_ν 3^3P . Die gestrichelte Kurve gibt einen Abfall $\sim \nu^{-14}$ wieder. Besonders markiert sind die Wellenlängen der Triplets $3^3P - n^3D$ ($n = 9, 10, 11, 12$) und die Seriengrenze $n = \infty$. Die hinter der Seriengrenze zusammenlaufenden Kurvenzüge a und b entsprechen verschiedenen Messungen bei unterschiedlicher Ionendichte

Eine derartige Abweichung erscheint für die nur als Abschätzung gedachte Formel von INGLIS und TELLER nicht bedeutungsvoll. Wir können also schließen, daß die Regel von INGLIS und TELLER mit etwa derselben Genauigkeit, die man bei Wasserstoff erwarten kann, auch auf Magnesium anwendbar ist. Diese Beziehung stellt daher bei allen wasserstoffähnlichen Seriengrenzen ein ausgezeichnetes Hilfsmittel dar, eine einfache und recht zuverlässige Bestimmung der Elektronendichte vorzunehmen.

Die Anregung zu dieser Arbeit gab Professor Dr. W. LOCHTE-HOLTGREVEN. Ich danke ihm für die Überlassung der experimentellen Hilfsmittel und sein stetes förderndes Interesse.

Der Studienstiftung des Deutschen Volkes schulde ich Dank für die Gewährung eines Stipendiums, das mir die Anfertigung der Arbeit ermöglichte.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Freien Universität Berlin

Zum Ergodensatz und zum Begriff der makroskopischen Observablen. I

Von

GÜNTHER LUDWIG

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 25. September 1957)

Es wird versucht, das ergodische Verhalten eines Systems, so wie die makroskopischen Observablen allein vom System her zu erklären und nicht als willkürliche Festsetzungen vom Beobachter im Sinne der Informationstheorie anzusehen. Dazu ist notwendig, eine Sorte physikalischer Systeme durch 1. einen Hilbert-Raum \mathfrak{H} , 2. einen Hamilton-Operator H und 3. durch die Produktzerlegung von $\mathfrak{H} = [\mathfrak{R}^N]$ (bei N gleichen Teilchen) zu charakterisieren. In dem vorliegenden Teil I werden die ergodischen Observablen und die Integrale der Bewegung untersucht und die Ergebnisse, über die in einer kurzen Notiz [10] schon berichtet wurde, mit dem Beweis von J. VON NEUMANN [2] verglichen.

1. Problemstellung

Bei den Beweisen des Ergodensatzes in der klassischen Mechanik [1] wird ein Begriff wie der der „makroskopischen Observablen“ überhaupt nicht benutzt. Alle Sätze und Beziehungen, die betrachtet und abgeleitet werden, gelten für „alle“ Observablen, d. h. für Funktionen $F(p_i, q_i)$, die bestimmte Integrierbarkeitseigenschaften besitzen.

Die bisherigen Beweise des Ergodensatzes in der Quantentheorie [2] bis [5] gehen alle auf den Beweis von J. v. NEUMANN [2] zurück, wenn man von solchen Beweisen absieht, die auf stochastischen Grundgleichungen beruhen; denn wenn man ehrlich ist, muß man zugeben, daß eine befriedigende Herleitung stochastischer Gleichungen allein aus den Grundgleichungen der klassischen Mechanik oder Quantentheorie bisher nicht gelungen ist. Die Beschreibbarkeit bestimmter Phänomene durch stochastische Gleichungen, wie z. B. durch die Boltzmannsche Stoßgleichung, scheint mir auch eine weitergehende Behauptung zu sein als sie die allgemeinen Zeitmittelwertrelationen der sog. Ergodensätze zum Ausdruck bringen. Wir wollen daher auf das Problem der Herleitung solcher stochastischen Gleichungen erst in einer späteren Arbeit eingehen, nachdem wir versucht haben, das Ergodenproblem und das makroskopische Verhalten näher zu erläutern.

In dem Beweis von J. v. NEUMANN [2] geht als eine willkürliche Annahme die Zerteilung des Hilbert-Raumes in makroskopisch unterscheidbare „Phasenzellen“ ein. Es sind dies Teilräume des Hilbert-Raumes, die gruppenweise einer „Energieschale“, d. h. dem von den

Eigenvektoren Φ_ϵ zu den Eigenwerten ϵ_ϵ des Hamilton-Operators mit $\epsilon' < \epsilon_\epsilon \leq \epsilon''$ aufgespanntem Teilraum, angehören. Die Phasenzellen dürfen aber auf keinen Fall so gewählt werden, daß alle Φ_ϵ einer und nur einer Phasenzelle angehören. Vielmehr müssen die Φ_ϵ einerseits und die Phasenzellen andererseits „schief“ zu einander liegen. Durch eine Mittelwertbildung zeigt J. v. NEUMANN, daß „fast alle“ Aufteilungen in Phasenzellen zum Ergodensatz führen, daß „fast alle“ makroskopischen Beobachter den Ergodensatz und Entropiesatz bestätigt finden. Die Abschätzungen J. v. NEUMANNs sind verbessert worden [3], [5]. Aus einer der letzten Arbeiten FARQUHAR und LANDSBERGS [5] geht hervor, daß der Beweis des Ergodensatzes eigentlich *allein* von dieser Einteilung in Phasenzellen abhängt. Wenn man auf dem Standpunkt steht, daß tatsächlich die ergodischen und thermodynamischen Eigenschaften eines Systems von der Art des Beobachters und nicht des Systems abhängen, könnte man mit diesem Ergebnis zufrieden sein. Entscheidend für physikalische Sätze des makroskopischen Verhaltens wäre dann allein die „Information“, die willkürlich vom Beobachter so oder so gewählt werden kann. Diese Art der Deutung läuft konform mit einer Interpretation der Quantenmechanik, die das „Wissen“ eines Subjekts mit in die Theorie einbezieht. Es soll hier nicht auf diese Interpretationsfrage näher eingegangen werden. Es gibt aber eine Reihe von Autoren, die hier eine objektive Auffassung vertreten. Ebenso habe ich an einigen Stellen versucht, diese objektive Auffassung zu begründen [6] bis [9] und werde dies in Kürze an anderer Stelle ausführlich tun.

Stellen wir uns aber einmal auf einen mehr objektiven Standpunkt, so wäre es erwünscht, das ergodische Verhalten als eine *Eigenschaft des physikalischen Systems* zu erkennen. Ebenso müßten die „makroskopischen Observablen“ vom *System* her ausgezeichnet sein. Sie sind nicht vom Beobachter frei festzusetzen, sondern umgekehrt sind sie dem Beobachter als die „natürlichen Eigenschaften“ des Systems gegeben. Führt der Beobachter „absichtlich“ andere als die vom System her ausgezeichneten Beobachtungen durch, so zerstört er im allgemeinen das uns in der Makrophysik bekannte Verhalten. Ist es möglich, diese Vorstellungen durchzuführen? Diese und die folgenden Arbeiten stellen einen Versuch dazu dar.

Um den angegebenen Gedankengang durchzuführen, müssen wir nach Dingen suchen, die eine bestimmte Sorte von physikalischen Systemen (z. B. Wasserstoffatomen) in der Quantenmechanik unabhängig vom Beobachter auszeichnen. Als *erstes* ist zur Beschreibung ein Hilbert-Raum \mathfrak{H} erforderlich. Hierin aber sind die verschiedensten Sorten physikalischer Systeme nicht unterschieden. *Zweitens* kommt jeder Sorte (isolierter) Systeme ein Hamilton-Operator H zu, der in bekannter Weise die Zeitveränderlichkeit beschreibt.

Reicht diese Kennzeichnung aus? Wohl nicht. Aus der Arbeit von FARQUHAR und LANDSBERG [5] geht hervor, daß es eigentlich gar nicht auf den Hamilton-Operator, sondern auf die Phasenzelleneinteilung ankommt. Wir wollen aber selbst kurz plausibel machen, daß H allein die Sorte physikalischer Systeme nicht ausreichend kennzeichnen kann. Durch H ist ein Eigenwertspektrum mit Entartungsgraden bestimmt. Jeder Hilbert-Raum ist mit jedem anderen isomorph, wenn man nur die Grundrechenoperationen in diesen Räumen betrachtet. Wenn zusätzlich H gegeben ist, so sind zwei Hilbert-Räume \mathfrak{H}_1 und \mathfrak{H}_2 mit den Hamilton-Operatoren H_1 bzw. H_2 isomorph, auch in bezug auf die Zeitveränderlichkeit ihrer Observablen, wenn nur H_1 und H_2 dasselbe Spektrum mit denselben Entartungsgraden besitzen. Es ist also von hieraus z.B. kein Unterschied zwischen einem System aus einem einzelnen Atom und einem „großen“ System, das aus vielen Atomen zusammengesetzt ist, sobald nur das Spektrum des Energieoperators gleich ist. Man wird einwenden, daß aber zwei solche Systeme nicht das gleiche Energiespektrum haben werden. Das mag richtig sein, wenn man die in der Natur wirklich vorkommenden Hamilton-Operatoren benutzt. Es ist aber leicht möglich, sich in Gedanken ein System aus einem *einzelnen* Massenpunkt zu konstruieren, das dasselbe Spektrum von H hat wie ein Liter Wasserstoffgas; denn man braucht ja nur H geeignet anzusetzen. Hieraus leuchtet die von FARQUHAR und LANDSBERG bewiesene Tatsache ein, daß entscheidend noch etwas anderes eingehen muß, für das J. v. NEUMANN die Phasenzelle wählte. Da wir uns jetzt aber auf den Standpunkt stellen, daß diese Phasenzellen nicht vom Beobachter her bestimmt sind, kann uns deshalb der Beweis des Ergodensatzes von J. v. NEUMANN nur insofern etwas nützen, als er zeigt, daß es nicht „aussichtslos“ ist, daß der Ergodensatz gilt, sondern daß dem Ergodensatz entsprechende mathematische Zeitmittelrelationen erfüllt sein werden, wenn nur die „richtigen“ Phasenzellen (d.h. die vom System her bestimmten) nicht gerade zu unglücklich relativ zu den Eigenvektoren von H liegen. Ich habe in Anbetracht dieser Sachlage einen Beweis der wesentlichen Mittelwertrelation in einer früheren Arbeit [6], [7] versucht, der nicht von einer Einteilung in Phasenzellen Gebrauch macht. Entsprechend den eben skizzierten Gedankengängen wollen wir erst einmal möglichst viel Folgerungen allein aus der angenommenen Kenntnis des Hamilton-Operators ziehen, um erst an späterer Stelle einen Schritt weiterzugehen, indem wir ein drittes Charakteristikum einer Sorte physikalischer Systeme einführen.

2. Ergodische Observable

Alleinige Voraussetzung ist also ein Hilbert-Raum \mathfrak{H} und der darin gegebene Hamilton-Operator H . Von diesem wollen wir zunächst an-

nehmen, daß sein Spektrum nur diskret sei, was physikalisch etwa der Tatsache entspricht, daß sich das System nur über ein endliches Raumgebiet ausdehnen kann (d.h. grob anschaulich, daß es in einem Kasten eingeschlossen ist). ε_q seien die Eigenwerte von H und E_q die Projektionsoperatoren auf die zugehörigen Eigenräume, so daß gilt:

$$H = \sum_q \varepsilon_q E_q. \quad (1)$$

A sei eine Observable und W ein statistischer Operator. A beschreibt also eine an dem System meßbare Größe und W eine statistische Gesamtheit (in folgendem kurz Gesamtheit genannt) von solchen Systemen. Der Mittelwert von A in der durch W gekennzeichneten Gesamtheit (der sog. Erwartungswert) ist bekanntlich:

$$M(A) = \text{Spur}(WA). \quad (2)$$

Es sei $\text{Spur}(W) = 1$ und damit die Funktion $M(A)$ normiert. Wir fragen nach der Zeitveränderlichkeit von $M(A)$.

Durch H ist der unitäre Operator ($\hbar = 1$ gesetzt)

$$U_t = e^{iHt} = \sum_q e^{i\varepsilon_q t} E_q \quad (3)$$

gegeben, wobei (1) benutzt wurde. Es ist bekanntlich

$$M_t(A) = \text{Spur}(WU_t A U_t^*). \quad (4)$$

Wir definieren als zeitliche Mittelung:

$$\bar{f}(t) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T-S} \int_S^T f(t) dt. \quad (5)$$

Dann gilt mit (3):

$$\left. \begin{aligned} \overline{M_t(A)} &= \sum_q \text{Spur}(W E_q A E_q) \\ &= \sum_q \text{Spur}(E_q W E_q A). \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

Jeder Gesamtheit W können wir eine Gesamtheit \underline{W} zuordnen mit:

$$\underline{W} = \sum_q E_q W E_q. \quad (7)$$

Aus $\text{Spur}(W) = 1$ folgt auch $\text{Spur}(\underline{W}) = 1$. Damit ist

$$\overline{M_t(A)} = \text{Spur}(\underline{W} A). \quad (8)$$

Die Gl. (8) wird häufig unter der Bezeichnung einer Gleichheit von Zeitmittel und Scharmittel erwähnt. Genau besagt sie folgendes: Ist eine Gesamtheit gegeben, so ist der Zeitmittelwert des Mittelwertes über die Gesamtheit W gleich einem von der Zeit unabhängigen Mittelwert über eine *andere* Gesamtheit \underline{W} .

Wir bilden jetzt die Differenz

$$D_t(A) = M_t(A) - \overline{M_t(A)} \quad (9)$$

und untersuchen

$$\overline{D_t^2(A)} = \lim_{T-S \rightarrow \infty} \frac{1}{T-S} \int_S^T [M_t(A) - \overline{M_t(A)}]^2 dt. \quad (10)$$

Ist $\overline{D_t^2(A)}$ „sehr klein“, so kann $M_t(A)$ zeitlich nur selten stark von $\overline{M_t(A)}$ abweichen. Da sich $\overline{D_t^2(A)}$ mit λ^2 multipliziert, wenn man A mit λ multipliziert, werden wir $\overline{D_t^2(A)}$ mit einer Größe vergleichen, die ebenfalls quadratisch in A ist. Wir wählen $\text{Spur}(\underline{W}A^2) = \overline{M_t(A^2)}$.

Setzen wir:

$$\Delta = \frac{\overline{D_t^2(A)}}{\overline{M_t(A^2)}}, \quad (11)$$

so interessiert uns, unter welchen Bedingungen $\Delta \ll 1$ werden kann. Sucht man solche Bedingungen, so ist es nicht sinnvoll, sowohl W wie A als frei wählbar anzusehen, um $\Delta \ll 1$ zu erreichen. Wir wollen vielmehr untersuchen, welche Bedingungen A erfüllen muß, wenn $\Delta \ll 1$ wird bei jedem beliebigen W . Dies bedeutet physikalisch, daß ein solches A für jede Gesamtheit einen zeitlich nur selten stark schwankenden Erwartungswert hat.

Es ist

$$M_t(A) - \overline{M_t(A)} = \sum_{\substack{\varrho, \sigma \\ \varrho \neq \sigma}} e^{i(\varepsilon_\varrho - \varepsilon_\sigma)t} \text{Spur}(E_\sigma W E_\varrho A). \quad (12)$$

Die Summe in (12) ordnen wir um, indem wir als neue Summationsvariable ω und ε einführen mit

$$\omega = \varepsilon_\varrho - \varepsilon_\sigma$$

$$\varepsilon = \varepsilon_\varrho,$$

und nennen um: $E_\varrho = E_\varepsilon$, $E_\sigma = E_{\varepsilon - \omega}$.

Damit wird:

$$M_t(A) - \overline{M_t(A)} = \sum_{\substack{\omega \\ (\omega \neq 0)}} e^{i\omega t} \sum_{\varepsilon} \text{Spur}(E_{\varepsilon - \omega} W E_\varepsilon A). \quad (13)$$

Setzen wir:

$$g(\omega) = \sum_{\varepsilon \text{ (fest)}} \text{Spur}(E_{\varepsilon - \omega} W E_\varepsilon A), \quad (14)$$

so gilt, da A Hermitesch ist: $g(-\omega) = \overline{g(\omega)}$.

Daher wird schließlich:

$$\overline{D_t^2(A)} = \sum_{\substack{\omega \\ (\omega \neq 0)}} |g(\omega)|^2. \quad (15)$$

Da wir W als beliebig voraussetzen wollten, betrachten wir zuerst den Fall: $W = P_v$. Dann ist

$$g(\omega) = \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} (E_\varepsilon \psi, E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi). \quad (16)$$

Hieraus folgt:

$$|g(\omega)| \leq \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} |(E_\varepsilon \psi, E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi)| \quad (17)$$

und mit der Schwartzschen Ungleichung

$$|g(\omega)| \leq \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon \psi\| \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|. \quad (18)$$

Hieraus folgt mit Hilfe der Schwartzschen Ungleichung in der Form:

$$\left| \sum_v a_v b_v \right| \leq \left(\sum_v |a_v|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_\mu |b_\mu|^2 \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (19)$$

daß

$$|g(\omega)|^2 \leq \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right) \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \right). \quad (20)$$

Wenn man (16) in der Form schreibt:

$$g(\omega) = \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} (E_{\varepsilon-\omega} A E_\varepsilon \psi, E_{\varepsilon-\omega} \psi), \quad (21)$$

so kann man statt (20) ebenso

$$|g(\omega)|^2 \leq \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} A E_\varepsilon \psi\|^2 \right) \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right) \quad (22)$$

ableiten. Setzen wir für das Maximum in bezug auf ω bei festem ψ :

$$m = \text{Max}_{\omega (\omega \neq 0)} \left[\left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} A E_\varepsilon \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \right], \quad (23)$$

so folgt:

$$\sum_{\omega (\omega \neq 0)} |g(\omega)|^2 \leq m^{\frac{1}{2}} \sum_{\omega} \left[\left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \times \right. \\ \left. \times \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \right]. \quad (24)$$

Wenden wir die Schwartzsche Ungleichung in der Form (19) in bezug auf die Summe über ω an, so folgt:

$$\overline{D_i^2(A)} \leq m^{\frac{1}{2}} \left[\sum_{\omega} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} A E_\varepsilon \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \times \right. \\ \left. \times \left[\sum_{\omega} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \right) \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}} \right] \quad (25)$$

$$\leq m^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\omega} \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\omega} \sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} A E_\varepsilon \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \times \\ \times \left[\sum_{\omega} \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \right) \left(\sum_{\varepsilon (\omega \text{ fest})} \|E_{\varepsilon-\omega} \psi\|^2 \right) \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (26)$$

$$\overline{D_i^2(A)} \leq m^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon'} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \|E_{\varepsilon'} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (27)$$

Mit

$$\underline{W}_\psi = \sum_{\varepsilon} E_{\varepsilon} P_{\psi} E_{\varepsilon} \quad (28)$$

ist

$$\text{Spur}(\underline{W}_\psi A^2) = \sum_{\varepsilon} \text{Spur}(P_{\psi} E_{\varepsilon} A^2 E_{\varepsilon}) = \sum_{\varepsilon} \|A E_{\varepsilon} \psi\|^2 = \sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_{\varepsilon'} A E_{\varepsilon} \psi\|^2, \quad (29)$$

so daß schließlich

$$\overline{D_t^2(A)} \leq m^{\frac{1}{2}} [\text{Spur}(\underline{W}_\psi A^2)]^{\frac{1}{2}} \left[\sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \nu_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_{\varepsilon} \psi\|^2 \|E_{\varepsilon'} \psi\|^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (30)$$

$\nu_{\varepsilon, \varepsilon'}$ ist eine ganze Zahl, die die Zahl der Glieder angibt, die beim Ausmultiplizieren der Summen in der Gl. (26) auftreten. Die Zahlen $\nu_{\varepsilon, \varepsilon'}$ lassen sich anschaulich interpretieren. Damit ein Glied $\|E_{\varepsilon} \psi\|^2 \|E_{\varepsilon'} \psi\|^2$ in (26) auftritt, muß es ein ω und zwei andere Eigenwerte ε_{10} , ε'_{10} geben, so daß

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_1 - \varepsilon_{10} &= \omega \\ \varepsilon'_{10} - \varepsilon'_1 &= \omega \end{aligned} \right\} \quad (31)$$

ist. Ersetzen wir in (31) ω durch $(-\omega)$, so erhalten wir dasselbe Glied noch einmal, was wir aber nicht getrennt zu untersuchen brauchen, da auch in (30) jedes Glied zweimal (nämlich mit $\nu_{\varepsilon, \varepsilon'}$ und $\nu_{\varepsilon', \varepsilon}$) auftritt. Aus (31) folgt:

$$\varepsilon_1 + \varepsilon'_1 = \varepsilon_{10} + \varepsilon'_{10}. \quad (32)$$

Es gibt also ein Paar von Werten ε_{10} , ε'_{10} , die dieselbe Summe wie ε_1 , ε'_1 haben. Hat man umgekehrt ein Paar von Werten $\varepsilon_{10} \neq \varepsilon_1$ und $\varepsilon'_{10} \neq \varepsilon'_1$, so kann man mit $\omega_1 = \varepsilon_1 - \varepsilon_{10}$ und $\omega_2 = \varepsilon_1 - \varepsilon'_{10}$ setzen:

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_1 - \varepsilon_{10} &= \omega_1 \\ \varepsilon'_{10} - \varepsilon'_1 &= \omega_1 \end{aligned} \right\} \quad (33)$$

oder

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_1 - \varepsilon'_{10} &= \omega_2 \\ \varepsilon_{10} - \varepsilon'_1 &= \omega_2 \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

Ist $\varepsilon_{10} = \varepsilon_1$ und $\varepsilon'_{10} = \varepsilon'_1$, so kann man nur (34) benutzen, da wegen $\omega_1 = 0$ der Fall (33) in (26) nicht vorkommt. Tragen wir in Fig. 1 in einer Ebene die Punkte ε , ε'

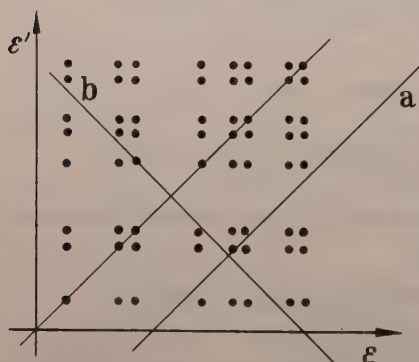


Fig. 1. Graphische Darstellung der Eigenwert-Paare ε , ε'

ein, so kann man in diesem Diagramm Geraden der Sorte (a) und (b) durch die Punkte ε , ε' ziehen. Auf einer Geraden der Sorte (a) liegen alle Punkte gleicher Frequenz $\varepsilon - \varepsilon'$, auf einer der Sorte (b) alle gleicher Summe $\varepsilon + \varepsilon'$.

$\nu_{\varepsilon_1, \varepsilon'_1}$ ist also gleich der Zahl der Punkte (außer $\varepsilon_1, \varepsilon'_1$), die auf einer Geraden der Sorte (b) durch $\varepsilon_1, \varepsilon'_1$ liegen.

Wir setzen zur Abkürzung:

$$\delta = \frac{m}{\text{Spur}(\underline{W}_\psi A^2)}, \quad \nu = \sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \nu_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \|E_{\varepsilon'} \psi\|^2. \quad (35)$$

Damit erhält man für (11):

$$\Delta \leq \nu^{\frac{1}{2}} \delta^{\frac{1}{2}}. \quad (36)$$

Es ist also $\Delta \ll 1$, wenn $\nu \delta \ll 1$ erfüllt ist.

Es sei $\bar{\nu}$ das Maximum aller $\nu_{\varepsilon, \varepsilon'}$, dann ist

$$\nu \leq \bar{\nu} \sum_{\varepsilon, \varepsilon'} \|E_\varepsilon \psi\|^2 \|E_{\varepsilon'} \psi\|^2 = \bar{\nu}. \quad (37)$$

$\omega = \omega_0$ sei die Frequenz, für die in (23) das Maximum erreicht wird. Aus (29) folgt

$$2 \text{ Spur}(\underline{W}_\psi A^2) \geq \sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_\varepsilon \psi\|^2 + \sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_{\varepsilon - \omega_0} \psi\|^2 \quad (38)$$

und mit der Beziehung $2a b \leq a^2 + b^2$

$$\text{Spur}(\underline{W}_\psi A^2) \geq \left(\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_\varepsilon \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_{\varepsilon - \omega_0} \psi\|^2 \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (39)$$

Aus (23), (35), (39) folgt somit:

$$\delta \leq \left(\frac{\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|E_\varepsilon A E_{\varepsilon - \omega_0} \psi\|^2}{\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_{\varepsilon - \omega_0} \psi\|^2} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|E_{\varepsilon - \omega_0} A E_\varepsilon \psi\|^2}{\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} \|A E_\varepsilon \psi\|^2} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (40)$$

Wir erhalten also eine Abschätzung für δ , indem wir in jedem Faktor getrennt das Maximum in bezug auf ψ wählen. Die Wahl des Maximums, z.B. im zweiten Faktor, führt auf die Eigenwertgleichung:

$$\sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} E_\varepsilon A E_{\varepsilon - \omega_0} A E_\varepsilon \psi = \sigma \sum_{\varepsilon (\omega_0 \text{ fest})} E_\varepsilon A^2 E_\varepsilon \psi. \quad (41)$$

Da die einzelnen Summanden links und rechts orthogonal sind, folgt aus (41)

$$E_\varepsilon A E_{\varepsilon - \omega_0} A E_\varepsilon \psi = \sigma E_\varepsilon A^2 E_\varepsilon \psi. \quad (42)$$

Ebenso folgt für den ersten Faktor die Eigenwertgleichung:

$$E_{\varepsilon - \omega_0} A E_\varepsilon A E_{\varepsilon - \omega_0} \psi = \eta E_{\varepsilon - \omega_0} A^2 E_{\varepsilon - \omega_0} \psi. \quad (43)$$

Sind $\bar{\sigma}$ und $\bar{\eta}$ die größten Eigenwerte der Gln. (42) und (43), so ist also

$$\delta \leq \bar{\sigma}^{\frac{1}{2}} \bar{\eta}^{\frac{1}{2}}. \quad (44)$$

$\bar{\sigma}$ ist nach (42) bestimmt durch

$$\bar{\sigma} = \text{Max}_\psi \frac{\|E_{\varepsilon'} A E_\varepsilon \psi\|^2}{\|A E_\varepsilon \psi\|^2}. \quad (45)$$

und durch eine ähnliche Gleichung $\bar{\eta}$. Sind Φ_ε und $\Phi_{\varepsilon'}$ zwei beliebige Eigenvektoren von H , so ist also

$$\bar{\sigma} = \text{Max}_{\Phi_\varepsilon, \Phi_{\varepsilon'}} \frac{|(\Phi_{\varepsilon'}, A \Phi_\varepsilon)|^2}{\|A \Phi_\varepsilon\|^2}, \quad (46)$$

$$\bar{\eta} = \text{Max}_{\Phi_\varepsilon, \Phi_{\varepsilon'}} \frac{|(\Phi_{\varepsilon'}, A \Phi_\varepsilon)|^2}{\|A \Phi_{\varepsilon'}\|^2}. \quad (47)$$

Es ist also nach (36), (37) sicher dann $\Delta \ll 1$, wenn für alle $\Phi_\varepsilon, \Phi_{\varepsilon'} (\varepsilon \neq \varepsilon')$

$$\bar{\nu} |(\Phi_{\varepsilon'}, A \Phi_\varepsilon)| \ll \|A \Phi_\varepsilon\| + \|A \Phi_{\varepsilon'}\| \quad \text{für } \varepsilon \neq \varepsilon', \quad (48)$$

denn aus (48) folgt, wenn z. B. $\|A \Phi_\varepsilon\| \geq \|A \Phi_{\varepsilon'}\|$ ist, daß

$$\bar{\nu} |(\Phi_{\varepsilon'}, A \Phi_\varepsilon)| \ll \|A \Phi_\varepsilon\|, \quad \text{d. h.} \quad \bar{\nu} \bar{\sigma}^{\frac{1}{2}} \ll 1 \quad (49)$$

ist; und wegen $\bar{\eta} \leq 1$ auch $\bar{\nu} \delta \ll 1$.

Ist $\bar{\nu}$ nicht *sehr* groß gegen 1, so ist (48) nicht nur eine hinreichende, sondern auch eine notwendige Bedingung. Wählt man nämlich $\psi = \Phi_\varepsilon + \Phi_{\varepsilon'}$ so ist, wie man leicht nachrechnet,

$$\overline{D_i^2(A)} = \frac{|(\Phi_{\varepsilon'}, A \Phi_\varepsilon)|^2}{\|A \Phi_\varepsilon\|^2 + \|A \Phi_{\varepsilon'}\|^2}. \quad (50)$$

Damit aber (48) wirklich als *hinreichende* Bedingung bewiesen ist, ist noch zu zeigen, daß $\overline{D_i^2(A)} \ll \text{Spur}(WA^2)$ für beliebiges W ist, sobald dies für $W = P_v$ gilt: Wegen $\text{Spur}(W) = 1$ gilt (z. B. [7], S. 145):

$$W = \sum_v w_v P_{v_v}. \quad (51)$$

Daraus folgt (mit $M_i(A)_v = \text{Spur}(P_v U_i A U_i^*)$)

$$D_i^2(A) = \left[\sum_v w_v (M_i(A)_{v_v} - \text{Spur}(W_{v_v} A)) \right]^2 \quad (52)$$

und nach der Schwartzschen Ungleichung in der Form:

$$\left(\sum_v w_v \chi_v \right)^2 = \left(\sum_v w_v^{\frac{1}{2}} (w_v^{\frac{1}{2}} \chi_v) \right)^2 \leq \left(\sum_v w_v \right) \left(\sum_v w_v \chi_v^2 \right) \quad (53)$$

und wegen $\sum_v w_v = 1$

$$D_i^2(A) \leq \sum_v w_v [M_i(A)_{v_v} - \text{Spur}(W_{v_v} A)]^2, \quad (54)$$

d. h.

$$D_i^2(A) \leq \sum_v w_v D_i^2(A)_{v_v} \quad (55)$$

und mit (37) und (44) wegen $\sum w_v = 1$:

$$\frac{\overline{D_i^2(A)}}{\text{Spur}(WA^2)} \leq \bar{\nu}^{\frac{1}{2}} \bar{\sigma}^{\frac{1}{2}} \bar{\eta}^{\frac{1}{2}}. \quad (56)$$

Wir wollen eine Observable A *stark ergodisch* in bezug auf \mathcal{A} nennen, wenn

$$\overline{D_t^2(A)} \ll \text{Spur}(\underline{W}A^2) = \overline{M_t(A^2)} \quad (57)$$

ist. Wann ist speziell ein Projektionsoperator P stark ergodisch? Die Bedingung (48) besagt, daß

$$\bar{v} |(P\Phi_\varepsilon, P\Phi_{\varepsilon'})| \ll \|P\Phi_\varepsilon\| + \|P\Phi_{\varepsilon'}\|. \quad (58)$$

Für $P = P_\varphi$ folgt aus (58):

$$\bar{v} |(\varphi, \Phi_\varepsilon)| |(\varphi, \Phi_{\varepsilon'})| \ll |(\varphi, \Phi_\varepsilon)| + |(\varphi, \Phi_{\varepsilon'})|. \quad (59)$$

(59) ist identisch mit der Bedingung:

$$|(\varphi, \Phi_\varepsilon)| \ll 1 \quad \text{für alle } \varepsilon \text{ bis auf höchstens ein } \varepsilon. \quad (60)$$

Es seien P_ν eine Reihe von paarweise orthogonalen ($P_\nu P_\mu = 0, \nu \neq \mu$) Projektionsoperatoren, die alle stark ergodisch seien. Es ist dann *nicht* garantiert, daß alle Operatoren der Form:

$$A = \sum_\nu \alpha_\nu P_\nu \quad (61)$$

stark ergodisch sind. Es sei ϱ_μ die jeweils kleinste Zahl, für die

$$\bar{v} |(P_\mu \Phi_\varepsilon, P_\mu \Phi_{\varepsilon'})| \leq \frac{\varrho_\mu}{2} (\|P_\mu \Phi_\varepsilon\| + \|P_\mu \Phi_{\varepsilon'}\|) \quad (62)$$

gilt. Dann ist wegen $P_\nu^2 = P_\nu$:

$$D_t^2(P_\nu) \leq \varrho_\nu \overline{M_t(P_\nu)}. \quad (63)$$

Es ergibt sich mit Hilfe der Schwartzschen Ungleichung:

$$D_t^2(A) = \sum_\nu \alpha_\nu^2 D_t^2(P_\nu) \leq \sum_\nu \alpha_\nu^2 (\overline{M_t(P_\nu)})^{\frac{1}{2}} (\overline{M_t(P_\nu)})^{-\frac{1}{2}} D_t^2(P_\nu) \quad (64)$$

$$\begin{aligned} &\leq \left[\sum_\nu \alpha_\nu^2 \overline{M_t(P_\nu)} \right] \left[\sum_\nu (\overline{M_t(P_\nu)})^{-1} D_t^2(P_\nu) \right] \\ &= \left[\sum_\nu D_t^2(P_\nu) (\overline{M_t(P_\nu)})^{-1} \right] \cdot \overline{M_t(A^2)}, \end{aligned} \quad (65)$$

also mit (63):

$$\overline{D_t^2(A)} \leq \left(\sum_\nu \varrho_\nu^2 \right) \overline{M_t(A^2)}. \quad (66)$$

Alle Operatoren der Form (61) sind stark ergodisch, wenn

$$\sum_\nu \varrho_\nu^2 \ll 1 \quad (67)$$

ist. Diese Forderung ist stärker, als daß nur jedes $\varrho_\nu \ll 1$ ist.

Was bedeutet es physikalisch, daß eine Observable stark ergodisch ist? Dazu gehen wir auf die Bedingung

$$\lim_{T-S \rightarrow \infty} \frac{1}{T-S} \int_S^T [M_t(A) - \overline{M_t(A)}]^2 dt \ll \overline{M_t(A^2)} \quad (68)$$

zurück. Die Funktion M ist durch eine Gesamtheit vieler Systeme gegeben. $M_t(A)$ ist der Mittelwert von A und $M_t(A^2)$ der von A^2 bei einer Messung von A zur Zeit t , gemittelt über die Gesamtheit. Werden diese Mittelwerte noch einmal zeitlich gemittelt, so erhält man $\overline{M_t(A)}$ bzw. $\overline{M_t(A^2)}$. Diese Werte können aber durch Messungen nur kompliziert erhalten werden, da die Durchführung einer Messung an *allen* Objekten einer Gesamtheit die Gesamtheit, d.h. den zu M gehörigen Operator W ändert. Man braucht also viele „gleiche“ Gesamtheiten zum selben W , um zu verschiedenen Zeiten t die $M_t(A)$ experimentell bestimmen zu können. (68) besagt nur, daß fast immer (d.h. zu fast allen Zeiten t) der Mittelwert $M_t(A)$ nur um einen gegenüber $\overline{M_t(A^2)}$ sehr kleinen Betrag von seinem zeitlich konstanten Mittelwert $\overline{M_t(A)}$ abweicht.

Die Bedingung (68) ist invariant gegenüber Maßstabsänderung von A , d.h. gegenüber Multiplikation von A mit einem Faktor λ . Sie ist es aber nicht gegenüber einer Nullpunktsänderung der Meßskala von A , d.h. gegenüber Addition von $\alpha 1$ zu A . Man kann eine solche Bedingung aufstellen, indem man auf der rechten Seite von (68) ebenfalls wie links einen gegenüber Addition von $\alpha 1$ invarianten Ausdruck hinschreibt:

$$\left. \begin{aligned} \lim_{T-S \rightarrow \infty} \frac{1}{T-S} \int_S^T [M_t(A) - \overline{M_t(A)}]^2 dt &\ll \\ &\ll \overline{M_t(A^2)} - (\overline{M_t(A)})^2 = \overline{M_t[(A - \overline{M_t(A)} 1)^2]}. \end{aligned} \right\} \quad (69)$$

Eine Observable A , die (69) erfüllt, heiße *maximal ergodisch*. Da

$$\overline{M_t(A)} = \sum_e \text{Spur}(W E_e A E_e) \quad (70)$$

ist, ist also (69) erfüllt, wenn die Observable

$$A' = A - \sum_e E_e A E_e \quad (71)$$

stark ergodisch ist. Die physikalische Bedeutung von (69) ist, daß die zeitlichen Schwankungen von $M_t(A)$ um seinen Mittelwert $\overline{M_t(A)}$ viel kleiner sind als der zeitliche Mittelwert der Schwankungen von A um $\overline{M_t(A)}$ genommen über die Einzelsysteme der Gesamtheit.

Eine schwächere Forderung als (68) erhält man, wenn man mit k als unterer und K als oberer Grenze von $(\varphi, A\varphi)(\varphi, \varphi)^{-1}$ setzt:

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T-S} \int_S^T [M_t(A) - \overline{M_t(A)}]^2 dt \ll (K-k)^2. \quad (72)$$

Eine Observable, die (72) erfüllt, heiße *schwach ergodisch*. Hier braucht die zeitliche Schwankung von $M_t(A)$ um den Mittelwert $\overline{M_t(A)}$ nur klein gegenüber $(K-k)^2$ zu sein. $K-k$ ist ein Maß für die Ausdehnung der Meßskala von A . A ist also schwach ergodisch, wenn die zeitliche Schwankung von $M_t(A)$ klein gegenüber der Gesamtausdehnung der Meßskala ist.

3. Vergleich mit dem Beweis von J. v. NEUMANN

J. v. NEUMANN [2] ordnet einem Zustand P_φ den statistischen Operator

$$U_\varphi = \sum_a \frac{(\Delta_a \varphi, \varphi)}{s_a} \Delta_a \quad (73)$$

zu. In unserer Schreibweise haben wir die Energieskala in Intervalle J_a einzuteilen und

$$\Delta_a = \sum_{\varepsilon \in J_a} E_\varepsilon \quad (74)$$

zu setzen. U_φ ist nicht gleich \underline{W}_φ , wie es nach (7) definiert ist:

$$\underline{W}_\varphi = \sum_\varepsilon E_\varepsilon P_\varphi E_\varepsilon. \quad (75)$$

Den Unterschied ersehen wir am einfachsten, wenn wir einmal voraussetzen, daß die Eigenwerte ε von H nicht entartet sind. Die normierten Eigenvektoren seien Φ_ε . Dann ist

$$U_\varphi = \sum_a \sum_{\varepsilon \in J_a} \frac{\sum_{\varepsilon \in J_a} |(\Phi_\varepsilon, \varphi)|^2}{s_a} P_{\Phi_\varepsilon} \quad (76)$$

und

$$\underline{W}_\varphi = \sum_a \sum_{\varepsilon \in J_a} |(\Phi_\varepsilon, \varphi)|^2 P_{\Phi_\varepsilon}, \quad (77)$$

wobei s_a gleich der Zahl der Eigenwerte in J_a ist. In U_φ kommen die P_{Φ_ε} mit über J_a gemittelten Koeffizienten vor. Wenn

$$\text{Spur}(U_\varphi A) \approx \text{Spur}(\underline{W}_\varphi A) \quad (78)$$

sein soll für alle φ , so müssen also für A annähernd alle Matricelemente

$$(\varepsilon | A | \varepsilon) \quad \text{für } \varepsilon \in J_a \quad (79)$$

gleich sein.

J. v. NEUMANN beweist nun den Satz, daß

$$\overline{[\text{Spur}(P_\psi U_i A U_i^*) - \text{Spur}(U_\psi A)]^2} \ll \text{Spur}(U_\psi A^2), \quad (80)$$

wenn die Operatoren A makroskopisch geeignet gewählt werden. Wir werden gleich auf die Frage dieser Wahl der A zurückkommen. Da

$$\overline{\text{Spur}(P_\psi U_i A U_i^*)} = \text{Spur}(W_\psi A) \quad (81)$$

und im allgemeinen nicht gleich $\text{Spur}(U_\psi A)$ ist, stecken also in (80) zwei Behauptungen: Erstens ist die zeitliche Schwankung des Erwartungswertes $M_t(A)$ klein (Ergodensatz), und zweitens ist der zeitliche Mittelwert $\bar{M}_t(A)$ fast gleich dem Mittelwert über eine Energieschale Δ_a , d.h. es gilt (78) (Zeitmittel = Scharmittel; nur ein Integral der Bewegung).

Gegen diese Zusammenfassung zweier Sätze in einem ist folgendes einzuwenden: Der Ergodensatz allein ist schon eine wichtige Aussage, die aber nach der Erfahrung nicht nur für eine Gruppe makroskopischer (vertauschbarer) Observablen A gilt, sondern für viel mehr Observable. Denn z.B. die Geschwindigkeit oder der Ort eines Atoms in einem Gas strebt einer Gleichgewichtsverteilung zu. Für zwei in keiner Weise vertauschbarer Observable ist also ebenfalls ein Ergodensatz zu erwarten. Aus diesem Grunde hatte ich in einer früheren Arbeit [6] die Aufgabe in Angriff genommen zu untersuchen, welche Observablen A in dem oben definierten Sinne stark ergodisch sind. Genau dieselbe Frage haben wir im vorangehenden behandelt, etwas verallgemeinert gegenüber den Betrachtungen der früheren Arbeit [6].

Ob dagegen (78), d.h. (79) für eine Observable A erfüllt ist, ist davon abhängig, ob es außer der Energie noch wesentlich andere „Integrale“ der Bewegungsgleichung gibt, d.h. Observable A , die zeitlich konstant sind. Wenn die Eigenwerte ε von H nicht entartet sind, so sind nur die Funktionen $f(H)$ zeitlich konstante Observable. Man wäre also geneigt, die Frage nach weiteren „Integralen“ in diesem Falle zu verneinen. Aber diese Einstellung ist physikalisch falsch, obwohl rein mathematisch richtig.

Alle Observable A , die nur Diagonalelemente haben, lassen sich als $f(H)$ schreiben. Für diese alle ist aber keineswegs (79) erfüllt, denn (79) würde behaupten, daß die Diagonalelemente von A in einem Intervall J_a praktisch gleich sind. J. v. NEUMANN zeigt nun auch gar nicht, daß (79) etwa für alle A erfüllt ist, sondern nur, daß man die A so wählen kann, daß auch (79) erfüllt ist.

Entscheidend für den J. v. Neumannschen Beweis ist, wie es auch gerade aus der Arbeit von FARQUHAR und LANDSBERG [5] hervorgeht, die „Wahl“ der makroskopischen Observablen, d.h. die „Wahl“ der Einteilung in Phasenzellen. Der wesentliche Teil des Beweises besteht darin zu zeigen, daß für „fast alle“ makroskopischen Beobachter, d.h.

für fast alle möglichen der „erlaubten“ Einteilungen in Phasenzellen (80) gilt. Über das Mittelungsverfahren ist viel herumgerätselt worden [4]. Ich halte dieses Mittelungsverfahren für physikalisch falsch, was an einem Beispiel begründet werde:

Wir betrachten zwei isolierte Systeme S_1 und S_2 mit den Hamilton-Operatoren H_1 und H_2 und das zusammengesetzte System $S = S_1 + S_2$ (aber energetisch isoliert nebeneinander) mit $H = H_1 + H_2$. Man kann sich die Eigenwerte σ von H_1 und η von H_2 als nichtentartet so gegeben denken, daß auch die Eigenwerte $\varepsilon = \sigma + \eta$ von H nicht entartet sind. Nach dem Beweis von J. v. NEUMANN in der Erweiterung von FARQUHAR und LANDSBERG ist es also äußerst „unwahrscheinlich“, einen makroskopischen Beobachter zu finden, der eine Abweichung von (80) feststellen würde. Dieser „äußerst unwahrscheinliche“ Fall liegt aber hier nach der Erfahrung „immer“ vor, denn man stellt fest, daß das Gleichgewicht von $S_1 + S_2$ nicht eindeutig durch die Energie von $S_1 + S_2$ gegeben ist, denn S_1 und S_2 können einem Gleichgewicht ganz verschiedener Temperaturen T_1 und T_2 zustreben, da S_1 von S_2 isoliert ist. Die *wirklichen* makroskopischen Beobachter beobachten also „immer“ Observable, für die (78) und (80) verletzt ist: Die zeitlichen Mittelwerte innerhalb von $S_1 + S_2$ sind *nicht* gleich den Mittelwerten über eine Energieschale Δ_a von $S_1 + S_2$. Es gibt in diesem Falle also durchaus neben der Energie des Gesamtsystems noch wesentlich verschiedene „Integrale“, z.B. die Energien der Teilsysteme S_1 und S_2 . Nach den Voraussetzungen, daß auch die $\varepsilon = \sigma + \eta$ nicht entartet sind, ist rein mathematisch z.B. $H_1 = f(H) = f(H_1 + H_2)$, d.h. $\sigma = f(\varepsilon)$. Trägt man sich aber einmal diese Funktion $\sigma = f(\varepsilon)$ über den Eigenwerten $\varepsilon = \sigma + \eta$ auf, so ist dies eine stark schwankende Funktion, für die also in *keiner Weise* $f(\sigma + \eta)$ für $\varepsilon_1 < \sigma + \eta \leq \varepsilon_2$ (d.h. $\sigma + \eta$ aus dem Intervall $J_a: \varepsilon_1 \dots \varepsilon_2$) praktisch konstant, d.h. (79) erfüllt ist. Die makroskopisch doch leicht beobachtbare „innere Energie“ U_1 von S_1 wäre nach J. v. NEUMANN eine „äußerst unwahrscheinliche“ Observable. Dieses Beispiel habe ich schon in einer früheren Arbeit [6], [7] erwähnt. Aus diesem Beispiel geht also hervor, daß die „apriori Wahrscheinlichkeiten“ für makroskopische Beobachter keine reale Bedeutung haben. Hinter dieser Wahl der apriori Wahrscheinlichkeiten verbirgt sich vielmehr das eigentliche Problem der makroskopischen Observablen, so wie es physikalisch tatsächlich vorliegt. Es sind die „richtigen“ makroskopischen Observablen gesucht, die man *tatsächlich* makroskopisch beobachtet. Oder in der Sprache der Wahrscheinlichkeiten für Beobachter: Es ist die *tatsächliche* (nicht apriori) Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Makrobeobachter gesucht, die alles andere als die bei den Mittelungsprozessen von J. v. NEUMANN benutzte apriori Gleichverteilung, sondern vielmehr eine extrem die wahren Makrobeobachter auszeichnende Verteilung ist.

Fragen wir nun nach dem Wert des Mittelungsprozesses, an dem der ganze Beweis hängt, so müssen wir zugeben, daß er eigentlich nicht mehr zeigt, als daß der Ergodensatz und der Satz von der Gleichheit des Schar- und Zeitmittels bei geeignet gewählten Observablen gilt. Es ist also nicht eigentlich ein Beweis des Ergodensatzes, sondern nur ein Beweis dafür, daß ein Beweis des Ergodensatzes möglich ist. Daß der Mittelungsprozeß anders durchzuführen ist, wenn es Integrale der Bewegung gibt, steht auch bei FARQUHAR und LANDSBERG [5] auf S. 142. Was aber entscheidet darüber, welches eben die richtige Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Makrobeobachter ist?

Wenn aber der Mittelungsprozeß keine reale Bedeutung hat, sondern vielmehr das eigentliche Problem verschleiert, so müßte man einen Weg suchen, ohne diesen Mittelungsprozeß die gewünschten Sätze zu beweisen. Dies war der entscheidende Grund, warum ich in der Arbeit über den Meßprozeß [6] einen anderen Beweisgang einschlug.

Wir haben deshalb im Vorangehenden nicht gleich von makroskopischen Observablen gesprochen, sondern erst einmal die (viel größere) Gruppe der ergodischen Observablen eingeführt. Dies war möglich, sobald der Hamilton-Operator H gegeben ist.

4. Integrale der Bewegung

Wenn wir aber weiter kommen wollen, z.B. ein Kriterium dafür finden wollen, ob ein System neben der Energie noch andere Konstanten (Integrale) der Bewegung besitzt, so reicht die Charakterisierung allein durch den Hilbert-Raum und Hamilton-Operator nicht aus. Was könnte noch hinzutreten? Neben den schon benutzten Grundlagen der Quantenmechanik treten in dieser Theorie noch die Vertauschungsrelationen zwischen den kanonischen Variablen P_i , Q_i auf. Es läge daher nahe, diese Variablen mit heranzuziehen. Da aber der Spin sich nicht ganz in dieses Schema einordnet, scheint mir eine etwas schwächere, aber allgemeinere quantenmechanische Beschreibungsweise eines „großen Systems“ wichtig zu sein:

Besteht ein System aus mehreren Teilchen, so läßt sich der Hilbert-Raum \mathfrak{H} des Systems als „Produkt“ der Hilbert-Räume der einzelnen Teilchen darstellen. Der Einfachheit halber wollen wir zuerst einmal voraussetzen, daß das System aus N gleichen Teilchen besteht. Ist \mathfrak{R} der Hilbert-Raum eines Teilchens, so ist

$$\mathfrak{H} = [\mathfrak{R}^N]_{\text{antisym}} \quad \mathfrak{H} = [\mathfrak{R}^N]_{\text{sym}}, \quad (82)$$

d. h. dem antisymmetrischen oder symmetrischen Teilraum des Produkt-raumes \mathfrak{R}^N . Für das Folgende ist die Bemerkung oft eine Erleichterung, daß wir mathematisch ganz \mathfrak{R}^N benutzen können, wenn wir nur immer

Vektoren aus \mathfrak{R}^N betrachten, die ganz im antisymmetrischen oder symmetrischen Teilraum liegen.

Unsere Behauptung ist, daß die drei Charakteristika: 1. Hilbert-Raum, 2. Hamilton-Operator, 3. Produktdarstellung des Hilbert-Raumes, ausreichen, um vom *System* her (nicht vom Beobachter her) zu bestimmen, was der Beobachter zu beobachten hat, wenn er Ergodensatz und makroskopisches Verhalten entdecken will. Es ist klar, daß nach der Quantentheorie ein Beobachter, d.h. genau genommen, eine Meßapparatur, im Prinzip auch andere Dinge messen kann als die vom System her in einem *solchen* Sinne „erlaubten“, daß man ergodisches und makroskopisches Verhalten vorfindet. Wenn wir also, basierend auf (82) im folgenden angeben, was wir z.B. als Integrale der Bewegung oder als makroskopische Observable anzusehen haben, so werden wir nicht *beweisen* können, daß diese Größen die einzig zu beobachtenden sind (denn man kann ja prinzipiell viele andere beobachten), sondern vielmehr stellen wir alle Größen zunächst einmal als *Definition* hin. Rückwärts, aus diesen Definitionen folgend, ist dann herzuleiten, daß man tatsächlich eine Beschreibung erhalten hat, die dem wirklichen Verhalten „makroskopischer Messungen“ und dem üblicherweise durchgeführter mikroskopischer Messungen entspricht. Dies ist ein Programm, das Schritt für Schritt durchgeführt werden soll. Wir beginnen in dieser ersten Abhandlung mit der Frage nach den Integralen der Bewegung.

Neben \mathfrak{R}^N betrachten wir die Hilbert-Räume \mathfrak{R}^n mit $n < N$. Es ist $\mathfrak{R}^N = \mathfrak{R}^n \times \mathfrak{R}^{N-n}$. Von jedem Operator A in \mathfrak{R}^N kann man die „Verkürzungen“ A_n auf \mathfrak{R}^n bilden ([7], S. 128). Setzen wir $\mathfrak{R}^n = \mathfrak{S}$, $\mathfrak{R}^{N-n} = \mathfrak{T}$ und seien φ_ν bzw. ψ_μ vollständig normierte Orthogonalsysteme aus \mathfrak{S} bzw. \mathfrak{T} , so ist $\varphi_\nu \psi_\mu$ ein solches von $\mathfrak{S} \times \mathfrak{T}$. Dann kann man schreiben:

$$A \varphi_\nu \psi_\mu = \sum_{\varrho \sigma} \varphi_\varrho \psi_\sigma a_{\varrho \sigma, \nu \mu}. \quad (83)$$

Die Verkürzung auf $\mathfrak{S} = \mathfrak{R}^n$ ist dann definiert durch:

$$A_n \varphi_\nu = \sum_{\varrho} \varphi_\varrho \sum_{\mu} a_{\varrho \mu, \nu \mu}. \quad (84)$$

Sind A und B zwei Operatoren in \mathfrak{R}^N , so kann man folgende inneren Produkte definieren:

$$(A_n, B_n) = \text{Spur}(A_n^* B_n), \quad (85)$$

wobei die Spur in \mathfrak{R}^n zu nehmen ist.

(85) ist sinnvoll, sobald für A und B

$$\text{Spur}(A_n^* A_n) < \infty, \quad \text{Spur}(B_n^* B_n) < \infty \quad (86)$$

ist. (86) ist hinreichend, aber nicht notwendig. Ein Operator, der (86) erfüllt, ist vollstetig. Ist P_Φ der Projektionsoperator auf einen Vektor Φ

mit $\|\Phi\|=1$, so ist jedes $(P_\Phi)_n$ vollstetig ([7], S. 130). Damit ist für zwei Operatoren P_Φ, P_Ψ

$$((P_\Phi)_n, (P_\Psi)_n) = \text{Spur}((P_\Phi)_n (P_\Psi)_n) \quad (87)$$

definiert. Ebenso kann man den „Abstand“

$$\|(P_\Phi)_n - (P_\Psi)_n\|^2 = ((P_\Phi - P_\Psi)_n, (P_\Phi - P_\Psi)_n) \quad (88)$$

einführen. Für $n=N$ ist:

$$\|P_\Phi - P_\Psi\| = 0 \quad \text{nur für} \quad P_\Phi = P_\Psi. \quad (89)$$

Ist P Projektionsoperator eines endlich dimensionalen Teilraumes aus \mathfrak{R}^N , so folgt mit Hilfe der Schwarzschen Ungleichung aus

$$P = \sum_{v=1}^q P_{\Phi_v} \quad (90)$$

und

$$P_n = \sum_{v=1}^q (P_{\Phi_v})_n, \quad (91)$$

daß

$$\left. \begin{aligned} \text{Spur}(P_n^* P_n) &= \sum_{v=1}^q \sum_{\mu=1}^q \text{Spur}((P_{\Phi_v})_n (P_{\Phi_\mu})_n) \\ &\leq \sum_{v=1}^q \sum_{\mu=1}^q \|(P_{\Phi_v})_n\| \|(P_{\Phi_\mu})_n\| < \infty. \end{aligned} \right\} \quad (92)$$

Also auch für endlich-dimensionale P und Q ist

$$(P_n, Q_n) \quad \text{und} \quad \|P_n - Q_n\|^2 \quad (93)$$

definiert. Ebenso folgt statt (89): Für $n=N$ ist

$$\|P - Q\| = 0 \quad \text{nur für} \quad P = Q. \quad (94)$$

(94) gilt aber nicht mehr für n statt N : Es kann sehr wohl $\|P_n - Q_n\|=0$, ($n < N$) sein, ohne daß $Q=P$ ist! Wir zeigen dies an einem Beispiel für P_Φ, P_Ψ : Mit dem oben eingeführten Orthogonalsystem sei z.B.:

$$\left. \begin{aligned} \Phi &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_1 \psi_1 + \varphi_2 \psi_2) \\ \Psi &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_1 \psi_2 + \varphi_2 \psi_1) \end{aligned} \right\} \quad (95)$$

Dann ist $(P_\Phi)_n = \frac{1}{2} P_{\varphi_1} + \frac{1}{2} P_{\varphi_2} = (P_\Psi)_n$ und damit also $\|(P_\Phi)_n - (P_\Psi)_n\|=0$, obwohl $P_\Phi \neq P_\Psi$ ist.

Ist aber $\|P_n - Q_n\|=0$, so ist auch $\|P_{n'} - Q_{n'}\|=0$ für $n' < n$, aber nicht notwendig für $n' > n$!

Eine Observable A heißt bekanntlich stetig, wenn $\|A f\| \leq C \|f\|$ ist. Dann ist:

$$\left. \begin{aligned} |(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| &= |(\varphi, A\varphi) - (\varphi, A\psi) + (\varphi, A\psi) - (\psi, A\psi)| \\ &= |(\varphi, A(\varphi - \psi)) + (\varphi - \psi, A\psi)| \leq C(\|\varphi\| + \|\psi\|)\|\varphi - \psi\|. \end{aligned} \right\} \quad (96)$$

Das heißt $(\varphi, A\varphi)$ ist eine stetige Funktion in φ . Ist umgekehrt:

$$|(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| \leq C(\|\varphi\| + \|\psi\|)\|\varphi - \psi\|, \quad (97)$$

so folgt bei einem festen ψ und beliebigem φ mit $\|\varphi\| = 1$ und $\|\psi\| = 1$:

$$\left. \begin{aligned} |(\varphi, A\varphi)| &\leq |(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| + |(\psi, A\psi)| \\ &\leq C(\|\varphi\| + \|\psi\|)\|\varphi - \psi\| + |(\psi, A\psi)| \\ &\leq C(\|\varphi\| + \|\psi\|)^2 + |(\psi, A\psi)| \leq 4C + |(\psi, A\psi)| = C', \end{aligned} \right\} \quad (98)$$

wobei C' nicht mehr von φ abhängt. Ist nicht $\|\varphi\| = 1$, so ergibt sich aus

$$\left(\frac{\varphi}{\|\varphi\|}, A \frac{\varphi}{\|\varphi\|} \right) \leq C' \quad (99)$$

sofort

$$|(\varphi, A\varphi)| \leq C'\|\varphi\|^2.$$

Für einen hermiteschen Operator folgt daraus bekanntlich, daß auch

$$\|A\varphi\| \leq C'\|\varphi\| \quad (100)$$

ist. Wenn $\|\varphi\| = 1$ und $\|\psi\| = 1$ ist, so schreibt sich (97)

$$|(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| \leq 2C\|\varphi - \psi\|. \quad (101)$$

Die linke Seite von (101) ist unabhängig davon, ob man ψ mit einem Faktor $e^{i\alpha}$ multipliziert, so daß für beliebiges α auch

$$|(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| \leq 2C\|\varphi - e^{i\alpha}\psi\| \quad (102)$$

ist. Es ist nun

$$\|\varphi - e^{i\alpha}\psi\|^2 = 2 - e^{i\alpha}(\varphi, \psi) - e^{-i\alpha}(\psi, \varphi). \quad (103)$$

Wenn $(\varphi, \psi) = |(\varphi, \psi)| e^{i\beta}$ ist, so setze man $\alpha = -\beta$, womit dann

$$\|\varphi - \psi e^{i\alpha}\|^2 = 2(1 - |(\varphi, \psi)|) \leq 2(1 - |(\varphi, \psi)|^2) \quad (104)$$

wird, wobei zuletzt $|(\varphi, \psi)| \leq 1$ berücksichtigt wurde. Da

$$\|P_\varphi - P_\psi\|^2 = 2(1 - |(\varphi, \psi)|^2) \quad (105)$$

ist, folgt schließlich aus (104):

$$|\text{Spur}(A P_\varphi) - \text{Spur}(A P_\psi)| \leq 2C\|P_\varphi - P_\psi\|. \quad (106)$$

Aber auch umgekehrt folgt aus (106):

$$\left. \begin{aligned} |(\varphi, A\varphi) - (\psi, A\psi)| &\leq 2\sqrt{2} C (1 - |(\varphi, \psi)|^2)^{\frac{1}{2}} \leq 4C (1 - |(\varphi, \psi)|)^{\frac{1}{2}} \\ &\leq 2\sqrt{2} C [2 - (\varphi, \psi) - (\psi, \varphi)]^{\frac{1}{2}} = 2\sqrt{2} C \|\varphi - \psi\|. \end{aligned} \right\} \quad (107)$$

Das heißt (106) ist ebenfalls eine Form der Bedingung dafür, daß A ein stetiger Operator ist.

Sind W und V zwei hermitesche Operatoren mit $W \geq 0$ und $V \geq 0$ und $\text{Spur}(W) = \text{Spur}(V) = 1$, so folgt mit Hilfe der Schwarzschen Ungleichung:

$$\left. \begin{aligned} |\text{Spur}(AW) - \text{Spur}(AV)| &= |\text{Spur}(A\sqrt{W}\sqrt{W} - A\sqrt{V}\sqrt{V})| \\ &= |\text{Spur}(A(\sqrt{W} - \sqrt{V})\sqrt{W}) + \text{Spur}(A\sqrt{V}(\sqrt{W} - \sqrt{V}))| \\ &\leq |(\sqrt{W}A, \sqrt{W} - \sqrt{V})| + |(A\sqrt{V}, \sqrt{W} - \sqrt{V})| \\ &\leq (\sqrt{W}A, \sqrt{W}A)^{\frac{1}{2}} \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\| + (A\sqrt{V}, A\sqrt{V})^{\frac{1}{2}} \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\|. \end{aligned} \right\} \quad (108)$$

Da $(\sqrt{W}A, \sqrt{W}A) = \text{Spur}(A\sqrt{W}\sqrt{W}A) = \text{Spur}(A^2W)$ ist, und wegen (100) $\text{Spur}(A^2W) \leq C'^2 \text{Spur}(W) = C'^2$ gilt, folgt schließlich:

$$|\text{Spur}(AW) - \text{Spur}(AV)| \leq 2C' \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\|. \quad (109)$$

(106) ist ein Spezialfall von (109) für $W = P_\varphi$ und $V = P_\psi$.

Wir definieren nun: Ein Operator A soll *n-stetig* oder *bis zur Teilchenzahl n korreliert* heißen, wenn statt (109) sogar:

$$|\text{Spur}(AW) - \text{Spur}(AV)| \leq D \|\sqrt{W_n} - \sqrt{V_n}\| \quad (110)$$

ist. Ein Operator A ist also im üblichen Sinne stetig, wenn er nach dieser Definition N -stetig ist.

Wir wollen nun zeigen, daß ein n -stetiger Operator auch n' -stetig ist für $n' > n$. Dazu genügt es zu zeigen, daß

$$\|\sqrt{W_n} - \sqrt{V_n}\| \leq \|\sqrt{W_{n'}} - \sqrt{V_{n'}}\| \quad \text{für } n' > n \quad (111)$$

ist.

Man kann nun schreiben:

$$\mathfrak{R}^{n'} = \mathfrak{R}^n \times \mathfrak{R}^{n'-n}, \quad (112)$$

woraus folgt, daß W_n die Verkürzung von $W_{n'}$ auf \mathfrak{R}^n ist. Der Beweis ist also formal mathematisch derselbe, gleichgültig welchen Wert wir für n' wählen. Es genügt deshalb, $n' = N$ zu setzen und

$$\|\sqrt{W_n} - \sqrt{V_n}\| \leq \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\| \quad (113)$$

zu zeigen. Da z.B. wegen $\text{Spur}(W) = \text{Spur}(V) = 1$

$$\frac{1}{2} \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\|^2 = 1 - (\sqrt{W}, \sqrt{V}) \quad (114)$$

ist und weiterhin (wegen \sqrt{W} und \sqrt{V} positiv definitiv)

$$(\sqrt{W}, \sqrt{V}) = \text{Spur} (\sqrt{W} \sqrt{V}) \geq 0 \quad (115)$$

gilt, ist (113) bewiesen, wenn man

$$\text{Spur} (\sqrt{W} \sqrt{V}) \leq \text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}) \quad (116)$$

zeigen kann. Leider ist es mir bisher nicht gelungen, (116) zu beweisen, obwohl ich die Richtigkeit dieser Beziehung vermute. Dagegen wird im Anhang die etwas schwächere Beziehung

$$\text{Spur} (\sqrt{W} \sqrt{V}) \leq (\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}))^{\frac{1}{2}} \quad (117)$$

bewiesen. Sie ist für unseren Zweck ebenfalls ausreichend, denn aus ihr folgt wegen $\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}) \leq 1$:

$$\begin{aligned} \|\sqrt{W_n} - \sqrt{V_n}\|^2 &= 2 [1 - \text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n})] \\ &= 2 [1 - (\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}))^{\frac{1}{2}}] \cdot [1 + (\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}))^{\frac{1}{2}}] \\ &\leq 4 [1 - (\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n}))^{\frac{1}{2}}] \leq 4 [1 - \text{Spur} (\sqrt{W} \sqrt{V})] = 2 \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\|^2 \end{aligned}$$

d.h.

$$\|\sqrt{W_n} - \sqrt{V_n}\| \leq \sqrt{2} \|\sqrt{W} - \sqrt{V}\|. \quad (118)$$

Der Faktor $\sqrt{2}$ ist belanglos, um zu zeigen, daß jeder n -stetige Operator auch n' -stetig für $n' > n$ ist.

Die n -stetigen Observablen sind also ein Teil der n' -stetigen Observablen für $n' > n$. Anschaulich sind die n -stetigen Observablen dadurch ausgezeichnet, daß ihre Erwartungswerte nur von Verkürzungen W_n der die Gesamtheit charakterisierenden Operatoren W abhängen.

Die Erwartungswerte für zwei verschiedene W und V werden gleich, sobald $W_n = V_n$ ist. Viele Observablen sind von dieser Art:

Sind z.B. A_i Operatoren, die nur auf höchstens n -Teilchen wirken, so ist der Erwartungswert von

$$A = \sum_{i=1}^k A_i \quad (119)$$

nur von W_n abhängig, da wegen der Symmetrie von $[\mathfrak{R}^N]$ die Verkürzungen von W auf irgendwelche n -Teilchen immer gleich sind, und da für jedes A_i der Erwartungswert somit nur von W_n abhängt.

Die n -stetigen Observablen gestatten also nicht, verschiedene Gesamtheiten W mit gleichen W_n zu unterscheiden. Wir wollen ein Beispiel für solche W geben. φ_ν sei ein vollständiges normiertes Orthogonalsystem in \mathfrak{R}^n und ψ_μ in \mathfrak{R}^{N-n} . λ_ν seien positiv reelle Zahlen. Mit

$$\Phi = \sum_{\nu} \lambda_{\nu} \varphi_{\nu} \psi_{\nu} \quad (120)$$

hat P_ϕ die Verkürzung:

$$(P_\phi)_n = \sum_\nu \lambda_\nu^2 P_{\phi_\nu}. \quad (121)$$

Auch für ein beliebiges anderes Orthogonalsystem ψ'_μ in \mathfrak{R}^{N-n} hätte ein Φ' nach (120) dieselbe Verkürzung (121). Aber auch jeder Operator der Form

$$W = (P_\phi)_n \times R = W_n \times R, \quad (122)$$

wobei R ein positiv definiter hermitescher Operator aus \mathfrak{R}^{N-n} mit $\text{Spur}(R) = 1$ ist, hat dieselbe Verkürzung W_n .

Welches ist anschaulich der Unterschied der verschiedenen W zum selben W_n ? Hinsichtlich der Häufigkeitsverteilung (in der statistischen Gesamtheit) von Eigenschaften, die sich nur auf n -Teilchen beziehen, sind alle diese Gesamtheiten gleich. Sie können sich also nur durch Correlationen bei mehr als n Teilchen unterscheiden. Die Messung von n -stetigen Observablen gestattet also z.B. nicht, die Correlationen aller N -Teilchen zu entdecken. Wir haben deshalb guten Grund zu der Vermutung, daß die Messung von Observablen A , die nicht n -stetig sind, eine um so größere und kompliziertere Meßapparatur erfordert, je größer n ist, weil eine Meßapparatur, die selbst aus N' -Teilchen besteht, nur Observablen zu messen gestattet, die n -stetig für mindestens ein $n \ll N'$ sind. Diese letzte Behauptung über den Zusammenhang von Meßapparatur und Observablen wird in einer anderen Abhandlung dargestellt, die zur Deutung der Quantenmechanik Stellung nimmt und eine Fortsetzung früherer Untersuchungen des Verfassers darstellt ([6] bis [9]).

Durch die Definition der n -stetigen Observablen sind wir in der Lage, der Frage nach den Integralen der Bewegung einen neuen Sinn zu geben.

Der Einfachheit halber sei erst einmal vorausgesetzt, daß H keine entarteten Eigenwerte ε habe. Φ_ε seien die Eigenvektoren, so daß

$$H = \sum_\varepsilon \varepsilon P_{\Phi_\varepsilon}. \quad (123)$$

Jedes Integral A der Bewegung hat dann die Form

$$A = \sum_\varepsilon \alpha_\varepsilon P_{\Phi_\varepsilon}. \quad (124)$$

Wir können nun aber fragen, wie die möglichen Integrale (124) aussehen, wenn wir noch verlangen, daß A n -stetig ist, d.h. welche Werte die α_ε für n -stetige Observable annehmen können.

Es ist

$$\alpha_\varepsilon = \text{Spur}(A P_{\Phi_\varepsilon}). \quad (125)$$

Betrachten wir die Verkürzungen

$$W_{\varepsilon n} = (P_{\Phi_\varepsilon})_n, \quad (126)$$

so kann also α_ε nur von $W_{\varepsilon n}$ abhängen. Um eine Übersicht über die n -stetigen Integrale zu bekommen, definieren wir für die Eigenwerte ε eine „Topologie“, indem wir den „Abstand“ zweier Werte ε und ε' durch

$$|\varepsilon, \varepsilon'|_n = \frac{1}{\sqrt{2}} \|\bar{W}_{\varepsilon n} - \bar{W}_{\varepsilon' n}\| \quad (127)$$

eingeführen. Wegen (114) und (115) ist

$$\|\bar{W}_{\varepsilon n} - \bar{W}_{\varepsilon' n}\| \leq \sqrt{2} \quad (128)$$

und damit

$$0 \leq |\varepsilon, \varepsilon'| \leq 1. \quad (129)$$

Die „Abstände“ (127) bilden an sich eine Menge diskreter Zahlen; aber für sehr große Werte von N ist es möglich, daß diese Zahlen fast dicht im Intervall $[0, 1]$ liegen. Wir wollen voraussetzen, daß die „Topologie“ (127) es erlaubt, mit der Menge der ε praktisch wie mit einer kontinuierlichen umzugehen, so daß die folgenden Begriffsbildungen möglich sind. Es ist ein interessantes mathematisches Problem, zu untersuchen, unter welchen Voraussetzungen für die Eigenvektoren Φ_ε sich die folgende Annahme asymptotisch für große Werte von N beweisen läßt:

Wir nehmen jetzt vom System an, daß die Eigenvektoren Φ_ε von H relativ zu der Zerlegung $\mathfrak{H} = [\mathfrak{R}^N]$ so liegen, daß es ein $n < N$ gibt, so daß die Topologie (127) praktisch kontinuierlich in dem Sinne ist, daß man den ε Punkte P_ε einer f -dimensionalen euklidischen Mannigfaltigkeit \mathfrak{P} so zuordnen kann, daß zwei Eigenwerte ε und ε' dann und nur dann nach dem Abstand $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ benachbart sind, wenn es P_ε und $P_{\varepsilon'}$ in \mathfrak{P} sind. (130)

Würden die Abstände $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ exakt dicht liegen, so ist bekanntlich nach einem Satz der Topologie die Dimensionszahl f eindeutig bestimmt. Wir können hier so sagen, daß die Dimensionszahl f dann eindeutig bestimmt ist, wenn der „Abstand“ $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ und der euklidische Abstand $\overline{P_\varepsilon P_{\varepsilon'}}$ sich nur um endliche (nicht zu kleine und zu große) Faktoren unterscheiden, d. h. wenn man nur solche „topologischen“ Abbildungen zuläßt, die schon in bezug auf die diskreten (aber fast dichten) Abstände (127) als stetig angesehen werden können.

Wir können also zu jedem ε f Parameter $c_1^{(\varepsilon)}, \dots, c_f^{(\varepsilon)}$ (wobei f eindeutig bestimmt ist) so einführen, daß jede in bezug auf $|\varepsilon, \varepsilon'|$ stetige Funktion α_ε als normale stetige Funktion der f Parameter $\alpha(c_1, \dots, c_f)$ geschrieben werden kann. Nach (124) und (125) müssen also alle n -stetigen Integrale die Form

$$A = \sum_{\varepsilon} \alpha(c_1^{(\varepsilon)}, \dots, c_f^{(\varepsilon)}) P_{\Phi_\varepsilon} \quad (131)$$

haben mit stetigen Funktionen $\alpha(c_1, \dots, c_f)$. Die $W_{\varepsilon n}$ sind um so weniger von einander verschieden, je näher die entsprechenden Punkte P_ε mit den Koordinaten $c_1^{(\varepsilon)}, \dots, c_f^{(\varepsilon)}$ liegen; und umgekehrt.

Jedes Integral (131) ist also eine Funktion von f Integralen

$$C_i = \sum_{\varepsilon} c_i^{(\varepsilon)} P_{\Phi_\varepsilon}, \quad i = 1, \dots, f. \quad (132)$$

Die Dimensionszahl f ist also die Zahl der unabhängigen, in Bezug auf $W_{\varepsilon n}$ stetigen Integrale des Systems.

Ob alle Operatoren (131), die ja in bezug auf $W_{\varepsilon n}$ stetig sind, allerdings auch n -stetig sind, ist nicht gezeigt. Die Zahl g der *unabhängigen* n -stetigen Operatoren der Form (131) kann aber höchstens gleich f werden, da jedes n -stetige Integral die Form (131) haben muß.

Wir können uns die unabhängigen Integrale C_1, \dots, C_f so gewählt denken, daß die C_1, \dots, C_g n -stetig sind. Die n -stetigen Integrale sind dann alle Funktionen von $C_1 \dots C_g$ allein. Ob aus (130) allein schon folgt, daß $g = f$ ist, kann ich bisher nicht zeigen; ich vermute auch nicht, daß zum Beweis von $g = f$ die Voraussetzung (130) ausreicht.

Aus der Definition von $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ und aus (111) folgt, daß

$$|\varepsilon, \varepsilon'|_{n'} \leq |\varepsilon, \varepsilon'|_n \quad (133)$$

ist für $n' < n$. Hieraus ergibt sich sofort, daß (130) auch für $n' < n$ mit einem $f' \leq f$ erfüllt ist. Ebenso folgt aus der Tatsache, daß jede n_1 -stetige Funktion auch n_2 -stetig für $n_2 > n_1$ ist, daß $g' \leq g$ sein muß. Die Zahl der unabhängigen n -stetigen Integrale nimmt ab, je kleiner n ist. n kann aber nicht beliebig groß sein, ohne daß (130) verletzt ist. Denn für $n = N$ gilt (130) sicher *nicht*, da für jedes Paar $\varepsilon \neq \varepsilon'$

$$|\varepsilon, \varepsilon'|_N = 1 \quad (134)$$

ist. Es wird also ein n_s geben, so daß für $n \leq n_s$ (130) erfüllt ist.

Erfüllt ein physikalisches System Bedingung (130), so folgt für den Zeitmittelwert einer n -stetigen Observablen B :

$$\overline{M_t(B)} = \sum_{\varepsilon} \text{Spur}(B E_{\varepsilon} W E_{\varepsilon}) = \sum_{\varepsilon} \text{Spur}(E_{\varepsilon} B E_{\varepsilon} W). \quad (135)$$

Da

$$\sum_{\varepsilon} E_{\varepsilon} B E_{\varepsilon} = \sum_{\varepsilon} (\varepsilon | B | \varepsilon) P_{\Phi_{\varepsilon}} \quad (136)$$

ist, ist also jedem n -stetigen B ein Integral $\tilde{B} = \sum_{\varepsilon} E_{\varepsilon} B E_{\varepsilon}$ der Form (130) zugeordnet, so daß

$$\overline{M_t(B)} = M_t(\tilde{B}), \quad \tilde{B} = \sum_{\varepsilon} \beta(C_1^{(\varepsilon)}, \dots, c^{(\varepsilon)}) P_{\Phi_{\varepsilon}} \quad (137)$$

ist.

Neben \underline{W} nach (7) können wir jedem W auch ein in bezug auf die n -stetigen Variablen gleichwertiges \underline{W} zuordnen:

$$\underline{W} = \sum_{\varepsilon} w(c_1^{(\varepsilon)}, \dots, c_f^{(\varepsilon)}) P_{\Phi_{\varepsilon}}, \quad (138)$$

wobei $w(c_1, \dots, c_f)$ eine stetige Funktion ist, die man aus den $(\varepsilon|W|\varepsilon)$ durch Mittelung erhält, wie z.B.:

$$w(x_1, \dots, x_f) = \frac{\sum_{\varepsilon} (\varepsilon|W|\varepsilon) e^{-\frac{\sum_{i=1}^f (c_i^{(\varepsilon)} - x_i)^2}{\alpha^2}}}{\sum_{\varepsilon} e^{-\frac{\sum_{i=1}^f (c_i^{(\varepsilon)} - x_i)^2}{\alpha^2}}}, \quad (139)$$

wobei α möglichst klein, aber noch so groß gewählt werden soll, daß man

$$e^{-\frac{\sum_{i=1}^f (c_i^{(\varepsilon)} - x_i)^2}{\alpha^2}} \quad (140)$$

in bezug auf $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ als stetig ansehen kann. Statt mit einer Gauß-Verteilung (140) hätte man natürlich auch andere schmale Verteilungen wählen können.

Es ist dann für alle n -stetigen Observablen:

$$\overline{M_t(B)} = \text{Spur}(B\underline{W}). \quad (141)$$

Nach (138) ist \underline{W} eine Funktion der Integrale C_i :

$$\underline{W} = w(C_1, \dots, C_f). \quad (142)$$

$w(c_1, \dots, c_f)$ ist anschaulich eine Art Wahrscheinlichkeitsverteilung über die Meß-Werte der Integrale $C_1 \dots C_f$. Wir wollen direkt eine solche Wahrscheinlichkeitsdichte in dem (c_1, \dots, c_f) -Raum einführen. Dazu konstruieren wir erst einmal eine Dichtefunktion für die Zahl der Zustände Φ_{ε} , die auf ein Raumgebiet im (c_1, \dots, c_f) -Raum kommen:

$$z(c_1, \dots, c_f) \Delta c_1 \dots \Delta c_f = Z_{\Delta V}, \quad (143)$$

wobei $Z_{\Delta V}$ die Zahl derjenigen ε ist, für die P_{ε} in $\Delta V = \Delta c_1 \dots \Delta c_f$ liegt. Mit \tilde{B} nach (137) folgt aus (142):

$$\left. \begin{aligned} \overline{M_t(B)} &= \text{Spur}(\tilde{B}\underline{W}) \\ &= \int \beta(c_1, \dots, c_f) w(c_1, \dots, c_f) z(c_1, \dots, c_f) dc_1 \dots dc_f. \end{aligned} \right\} \quad (144)$$

Wir können \underline{W} im $(c_1 \dots c_f)$ -Raum die Wahrscheinlichkeitsdichte:

$$\varrho(c_1, \dots, c_f) = w(c_1, \dots, c_f) z(c_1, \dots, c_f) \quad (145)$$

zuordnen, mit der

$$\left. \begin{aligned} \overline{M_t(B)} &= \int \beta(c_1, \dots, c_f) \varrho(c_1, \dots, c_f) dc_1 \dots dc_f, \\ 1 &= \int \varrho(c_1, \dots, c_f) dc_1 \dots dc_f \end{aligned} \right\} \quad (146)$$

ist.

Die $\beta(c_1, \dots, c_f)$ sind nach (146) die zeitlich gemittelten Erwartungswerte von B für solche speziellen Gesamtheiten, wo die Integrale C_1, \dots, C_f die bestimmten Werte c_1, \dots, c_f annehmen. Um die $\beta(c_1, \dots, c_f)$ auszurechnen, braucht man nur solche W zu wählen, für die $\varrho(c_1, \dots, c_f)$ eine relativ scharfe Verteilung um einen Punkt im $(c_1 \dots c_f)$ -Raum herum darstellt. Es ist *nicht* notwendig, daß $w(c_1 \dots c_f)$ relativ scharf ist!

Jede Funktion:

$$W = w(C_1, \dots, C_f) \quad (147)$$

für die $w(c_1 \dots c_f) \cdot z(c_1 \dots c_f)$ relativ scharf ist, kann als Operator benutzt werden, um β in der Form

$$\beta = \text{Spur}(BW) \quad (148)$$

an der Stelle zu berechnen, wo wz wesentlich von Null verschieden ist.

Für die Praxis ist am wichtigsten der Fall, daß $f=1$ und $g=1$ ist, d.h. daß es nur ein unabhängiges n -stetiges Integral C_1 gibt.

Weiterhin ist in allen vorkommenden Fällen die Energie H eine n -stetige Funktion für $n \geq n_0$. Ist die Bedingung (130) für ein $n \geq n_0$ erfüllt, so kann als eines der Integrale z.B. $C_1 = H$ benutzt werden. Ist dann noch $f=1$, d.h. H das einzige unabhängige Integral, so sind alle Integrale „stetige“ Funktionen von H . Beliebige Funktionen von H sind zwar auch Integrale, aber im allgemeinen nicht n -stetig! Hierin liegt der entscheidende Punkt gegenüber der einfachen Betrachtung, die alle Integrale als Funktion von H darstellt. Ist $g > 1$, so ist z.B. auch C_2 eine Funktion von H , aber keine in bezug auf $W_{\varepsilon n}$ „stetige“, und damit ein neues Integral. Ist $g=1$, so sind nur die stetigen Funktionen von H auch n -stetig.

Dies möge an dem oben angeführten Beispiel der zwei ungekoppelten Systeme S_1 und S_2 erläutert werden*. Das ohne energetische Wechselwirkung zusammengesetzte System nennen wir wieder $S_1 + S_2$. Für S_1 und S_2 allein sei nur die Energie ein Integral der Bewegung. Die Eigenvektoren des Energieoperators $H = H_1 + H_2$ von $S_1 + S_2$ sind die (symmetrisierten oder antisymmetrisierten) Produkte der Eigenvektoren von H_1 und H_2 . Die Eigenwerte $\varepsilon = \sigma + \eta$ (σ von H_1 und η von H_2) mögen nicht entartet sein. Wenn man nun die $W_{\varepsilon n}$ und die Abstände $|\varepsilon, \varepsilon'|_n$ betrachtet, so ergibt sich jetzt von selbst (ohne Bezug auf die

* Obwohl für das System $S_1 + S_2$ Resonanzfrequenzen auftreten, ist im allgemeinen die Zahl $\nu_{\varepsilon \varepsilon'}$ aus (30) kleiner als 3 für alle ε und ε' !

Willkür eines Beobachters!), daß die „Punkte“ ε in einer zweidimensionalen Mannigfaltigkeit angeordnet werden *müssen*, wobei man als die beiden Parameter z.B. die Energie E_1 von S_1 und E_2 von S_2 benutzen kann. Ohne daß man von vornherein wüßte, daß $S_1 + S_2$ aus den beiden Systemen S_1 und S_2 ohne energetische Wechselwirkung zusammengesetzt ist, würde man also aus der Konstruktion der $W_{\varepsilon n}$ finden, daß es zwei Integrale der Bewegung gibt, als die man z.B. E_1 und E_2 wählen kann. Bringt man nun die beiden Systeme in Wärmekontakt, so müssen sich die Eigenvektoren von $H = H_1 + H_2 + V$ (V = Wechselwirkung zwischen S_1 und S_2), so beim Einschalten von V ändern, daß dann die $W_{\varepsilon n}$ stetig mit ε variieren, während es für $V = 0$ nicht der Fall ist. Für $V = 0$ ist $W_{\varepsilon n}$ nur stetig auf der zweidimensionalen η, σ -Ebene.

Im Falle $g = 1$ und $C_1 = H$ ist es üblich, in (147) die kanonische Gesamtheit

$$W = \frac{1}{\text{Spur} \left(e^{-\frac{H}{\Theta}} \right)} e^{-\frac{H}{\Theta}} \quad (149)$$

zu wählen. Dies ist erlaubt, solange die Breite der Verteilung (145):

$$\varrho(\varepsilon) = \frac{e^{-\frac{\varepsilon}{\Theta}} z(\varepsilon)}{\int e^{-\frac{\varepsilon'}{\Theta}} z(\varepsilon') d\varepsilon'} \quad (150)$$

so schmal ist, daß für alle ε , für die (150) wesentlich von Null verschieden ist, die $W_{\varepsilon n}$ praktisch alle gleich sind. Dann und nur dann ist es erlaubt, nach (148)

$$\beta(\varepsilon) = \frac{\text{Spur} \left(B e^{-\frac{H}{\Theta}} \right)}{\text{Spur} \left(e^{-\frac{H}{\Theta}} \right)} \quad (151)$$

zu berechnen. Der Wert ε in (151) ist durch die Stelle bestimmt, wo (150) sein Maximum hat, d.h. er hängt vom „Parameter“ Θ ab. Durch die Formeln (149) bis (151) läßt sich, wie in [6] skizziert, die Thermodynamik der Gleichgewichte herleiten. (151) hat aber nicht nur einen Sinn für „makroskopische“ Observable, denn diese haben wir bisher noch gar nicht eingeführt. (119) kann für alle n -stetigen Observablen angewandt werden.

Wenn wir Observable B betrachten, die ergodisch und n -stetig sind, so folgt aus allem Vorhergehenden, daß $M_t(B)$ fast immer den Wert $\overline{M_t(B)}$ hat, der nach (146) berechnet werden kann, wobei ϱ eine durch W bestimmte Häufigkeitsverteilung für die Meßwerte c_i der Integrale C_i ist. Für $g=f$ sind alle Integrale n -stetig und der „Zeitmittelwert“ \tilde{B} von B nach (137) eine stetige Funktion $\beta(C_1, \dots, C_f)$ dieser Integrale.

Wir können die bisherigen Ergebnisse mit den Ansätzen des Beweises von J. v. NEUMANN vergleichen. Auch wir haben im Falle $f=g=1$ und H als Integral eine Art Einteilung in „Energieschalen“ gefunden: Eine Energieschale ist bestimmt durch den Teilraum derjenigen Φ_ε , für die die $W_{\varepsilon n}$ praktisch gleich sind. Die so eingeführten „Energieschalen“ sind natürlich keine scharf herausgeschnittenen Intervalle aus der Energieskala. Sind noch außer H andere Integrale C_i vorhanden, so unterteilen diese Integrale die Energieschale weiterhin in „stationäre“ Zellen, die wieder durch die Teilräume derjenigen Φ_ε mit fast gleichen $W_{\varepsilon n}$ gegeben sind. Der von J. v. NEUMANN nach (76) eingeführte Operator U_ψ ist für $g=f=1$ und für $W=P_\psi$ mit \underline{W} nach (138) *identisch*, wenn man die Intervalleinteilung J_a in (76) genau so wählt, wie es dem von uns angegebenen Begriff der Energieschale entspricht, d.h. wenn man in (139) statt mit der Gauß-Verteilung mit einer Intervalleinteilung J_a mittelt, wo die J_a so groß sind, daß ein J_a so viele ε umfaßt, daß J_a im Sinne des Abstandes (127) als „kontinuierliches“ Intervall im Sinne von (130) angesehen werden kann, aber doch so klein, daß jede im Sinne der Topologie (130) stetige Funktion in J_a einen fast konstanten Wert hat. Ob mit dieser Intervalleinteilung oder mit der Gauß-Verteilung gemittelt wird, man erhält nach (139) praktisch dieselbe Funktion $w(c_1)=w(\varepsilon)$, d.h. dasselbe $\underline{W}=U_\psi$. Mit (141) und (68) folgt für alle n -stetigen und stark ergodischen Observablen B :

$$[\overline{M_t(B) - \text{Spur}(\underline{WB})}]^2 \ll \overline{M_t(B^2)}. \quad (152)$$

Ist auch B^2 n -stetig, so gilt:

$$[\overline{M_t(B) - \text{Spur}(\underline{WB})}]^2 \ll \text{Spur}(\underline{WB^2}), \quad (153)$$

was mit (80) für $W=P_\psi$ und $f=g=1$, $C_1=H$ identisch ist. (153) gilt aber nicht nur für alle „makroskopischen“ (im Sinne von J. v. NEUMANN) Observablen, sondern für alle n -stetigen und stark ergodischen B und n -stetigen B^2 , die gar nicht alle miteinander vertauschbar sind. Es fallen unter diese B auch mikroskopische Observable, die sich nur auf wenige Teilchen $\leq n$ beziehen, wenn sie nur stark ergodisch sind.

So kommen wir auf die Frage, ob alle n -stetigen Observablen ergodisch sein können, die in einer weiteren Abhandlung untersucht werden soll. Ebenso ist noch offen zu prüfen, ob überhaupt (130) erfüllbar ist und welche Eigenschaften für die Φ_ε aus (130) folgen. Da dies mit der eben angeschnittenen Frage mathematisch eng zusammenhängt, verschieben wir die Analyse von (130) auf diese Abhandlung. Weiterhin soll dort untersucht werden, wie unsere Begriffsbildungen von der Zahl n abhängen. Auch die Frage nach den Integralen eines Systems mit entarteten Eigenwerten von H verschieben wir auf diese Abhandlung,

da die wesentliche Aufgabe der Untersuchung des Nichtgleichgewichtes darin bestehen wird, die $(P_\Phi)_n$ zu untersuchen, wenn Φ ein Vektor aus dem mehrdimensionalen Teilraum ist, der zu allen Eigenwerten ε aus einem Intervall J_a gehört. Der Fall entarteter ε ist dann nur ein Spezialfall, wo schon für ein einzelnes ε der zugehörige Teilraum mehrdimensional ist.

Anhang

Wir schreiben $\mathfrak{R}^n = \mathfrak{r}$ und $\mathfrak{R}^{N-n} = \mathfrak{t}$, so daß $\mathfrak{R}^N = \mathfrak{r} \times \mathfrak{t}$. φ_ν sei das Eigenvektorensystem von W_n und ψ_μ von V_n im Raum \mathfrak{r} . η_ϱ seien beliebige Basisvektoren in \mathfrak{t} . Damit sei

$$W_n \varphi_\nu = \lambda_\nu^2 \varphi_\nu, \quad V_n \psi_\mu = \sigma_\mu^2 \psi_\mu. \quad (\text{A.1})$$

Dann ist

$$\text{Spur}(|W_n| |V_n|) = \sum_{\nu, \mu} \lambda_\nu \sigma_\mu |(\varphi_\nu, \psi_\mu)|^2. \quad (\text{A.2})$$

Die Matrixelemente von $|W|$ in bezug auf das System $\varphi_\nu \eta_\varrho$ seien $(\nu, \varrho | |W| \nu', \varrho')$ und von $|V|$ entsprechend $(\nu, \varrho | |V| \nu', \varrho')$. Dann ist:

$$\text{Spur}(|\bar{W}| |V|) = \sum_{\substack{\nu', \varrho' \\ \nu, \varrho}} (\nu, \varrho | |W| \nu', \varrho') \overline{(\nu', \varrho | |V| \nu', \varrho')}. \quad (\text{A.3})$$

Die Matrixelemente von W_n bzw. V_n im System φ_ν erhält man durch:

$$\left. \begin{aligned} (\nu | W_n | \nu'') &= \sum_{\nu', \varrho', \varrho} (\nu, \varrho | |W| \nu', \varrho') \overline{(\nu'', \varrho | |W| \nu', \varrho')} \\ (\nu | V_n | \nu'') &= \sum_{\nu', \varrho', \varrho} (\nu, \varrho | |V| \nu', \varrho') \overline{(\nu'', \varrho | |V| \nu', \varrho')} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.4})$$

Wir definieren nun formal zwei neue Hilbert-Räume

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{s} &= \mathfrak{t} \times \mathfrak{r} \times \mathfrak{t} \\ \mathfrak{v} &= \mathfrak{r} \times \mathfrak{s} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A.5})$$

Dann können wir $(\nu, \varrho | A | \nu', \varrho')$ als Komponenten eines Vektors in \mathfrak{v} ansehen, wobei sich ν auf \mathfrak{r} , $(\varrho, \nu', \varrho')$ auf \mathfrak{s} , d.h. ϱ auf \mathfrak{t} , ν' auf \mathfrak{r} und ϱ' auf das zweite \mathfrak{t} beziehen. Der auf diese Art $|W|$ zugeordnete Vektor aus \mathfrak{v} sei Φ , der $|V|$ zugeordnete Ψ . Dann ist nach (A.3) wegen $\text{Spur}(|W| |V|)$ positiv reell:

$$\text{Spur}(|W| |V|) = (\Phi, \Psi) = |(\Phi, \Psi)|, \quad (\text{A.6})$$

und nach (A.4):

$$W_n = (P_\Phi)_\mathfrak{r}, \quad V_n = (P_\Psi)_\mathfrak{r}, \quad (\text{A.7})$$

wobei $(B)_r$ die Verkürzung eines Operators in $\mathfrak{v} = \mathfrak{r} \times \mathfrak{s}$ auf den Raum \mathfrak{r} sei. Nach [7], S. 120 kann man Φ und Ψ in \mathfrak{v} so schreiben:

$$\Phi = \sum_{\nu} \lambda_{\nu} \varphi_{\nu} g_{\nu}, \quad \Psi = \sum_{\mu} \sigma_{\mu} \psi_{\mu} h_{\mu}, \quad (\text{A.8})$$

wobei g_{ν} und h_{μ} normierte, orthogonale Vektoren in \mathfrak{s} sind. Aus (A.6) folgt dann:

$$(\Phi, \Psi) = \sum_{\nu, \mu} \lambda_{\nu} \sigma_{\mu} (\varphi_{\nu}, \psi_{\mu}) (g_{\nu}, h_{\mu}). \quad (\text{A.9})$$

Mit Hilfe der Schwarzschen Ungleichung ergibt sich:

$$\begin{aligned} |(\Phi, \Psi)| &= \left| \sum_{\nu, \mu} \sqrt{\lambda_{\nu}} \sqrt{\sigma_{\mu}} (\varphi_{\nu}, \psi_{\mu}) \sqrt{\lambda_{\nu}} \sqrt{\sigma_{\mu}} (g_{\nu}, h_{\mu}) \right| \\ &\leq \left[\sum_{\nu, \mu} \lambda_{\nu} \sigma_{\mu} |(\varphi_{\nu}, \psi_{\mu})|^2 \right]^{\frac{1}{2}} \left[\sum_{\nu, \mu} \lambda_{\nu} \sigma_{\mu} |(g_{\nu}, h_{\mu})|^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Da wegen $\sum_{\nu} \lambda_{\nu}^2 = 1 = \sum_{\mu} \sigma_{\mu}^2$

$$\begin{aligned} \sum_{\nu, \mu} \lambda_{\nu} \sigma_{\mu} |(g_{\nu}, h_{\mu})|^2 &= \text{Spur} \left(\left(\sum_{\nu} \lambda_{\nu} P_{g_{\nu}} \right) \left(\sum_{\mu} \sigma_{\mu} P_{h_{\mu}} \right) \right) \\ &\leq \left[\text{Spur} \left(\sum_{\nu} \lambda_{\nu}^2 P_{g_{\nu}} \right) \cdot \text{Spur} \left(\sum_{\mu} \sigma_{\mu}^2 P_{h_{\mu}} \right) \right]^{\frac{1}{2}} = 1 \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

ist, folgt also schließlich mit (A.2) und (A.6):

$$\text{Spur} (\sqrt{W} \sqrt{V}) \leq [\text{Spur} (\sqrt{W_n} \sqrt{V_n})]^{\frac{1}{2}}. \quad (\text{A.12})$$

Herrn Dipl.-Phys. JOACHIM SCHRÖTER danke ich für die Durchsicht des Manuskripts.

Literatur

- [1] HOPF, E.: Ergodentheorie. Berlin: Springer 1937. — [2] NEUMANN, J. v.: Z. Physik **57**, 30 (1929). — [3] PAULI, W., u. M. FIERZ: Z. Physik **106**, 573 (1937). — [4] FIERZ, M.: Helv. phys. Acta **28**, 705 (1955). — [5] FARQUHAR, J. E., and P. T. LANDSBERG: Proc. Roy. Soc. Lond. **239**, 134 (1957). — [6] LUDWIG, G.: Z. Physik **135**, 483 (1953). — [7] LUDWIG, G.: Die Grundlagen der Quantenmechanik, Berlin: Springer 1954. — [8] LUDWIG, G.: Die Stellung des Subjekts in der Quantenmechanik. Festschrift zur 200-Jahrfeier der Columbia-Univ., S. 262. Berlin: Colloquium-Verlag. — [9] LUDWIG, G.: Phys. Bl. **11**, 489 (1955). — [10] LUDWIG, G.: Z. Naturforsch. **12a**, 662 (1957).

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Marburg a.d. Lahn

Über die Messung der Winkelkorrelationen im γ -Spektrum des ^{169}Tm

Von

U. CAPPELLER und R. KLINGELHÖFER

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 9. November 1957)

Die für das Termschema des Kernes ^{169}Tm vorgeschlagenen Energie- und Drehimpulswerte stützen sich bisher lediglich auf die Messung von γ - γ -Koinzidenzspektren, Konversionselektronenspektren und die Auswertung der Konversionskoeffizienten. Zur Prüfung des Termschemas wurden die Winkelkorrelationen der 199/110 keV-Kaskade und der 178/131 keV-Kaskade mit zwei in Koinzidenz geschalteten Einkanal-Szintillationsspektrometern gemessen. Die Ergebnisse der Messungen bestätigen die vorgeschlagenen Drehimpuls- und Multipolzuordnungen und liefern darüberhinaus eine Aussage über den Mischungscharakter der untersuchten γ -Linien.

I. Einleitung

Das radioaktive Isotop ^{169}Yb zerfällt mit einer Halbwertszeit von 32 Tagen durch K -Einfang in angeregte Zustände des Kernes ^{169}Tm , aus denen der Kern dann unter Emission von γ -Strahlung und Konversionselektronen in mehreren Kaskaden in seinen stabilen Grundzustand übergeht. Das γ -Spektrum und das Konversionselektronenspektrum, sowie die γ - γ -Koinzidenzspektren sind von mehreren Autoren [1] bis [7] mit Szintillations- und β -Spektrometern untersucht worden. Fig. 1 zeigt das auf Grund dieser Messungen vorgeschlagene Termschema. Alle bisher beobachteten Übergangsenergien fügen sich in dieses Schema ein; die darin enthaltenen γ - γ -Kaskaden entsprechen den gemessenen Koinzidenzspektren [5].

Neben den Energiewerten sind in Fig. 1 auch noch Drehimpuls- und Paritätswerte eingetragen; sie stützen sich — ausgehend von dem zu $I = \frac{1}{2}$ gemessenen Drehimpuls des ^{169}Tm -Grundzustandes [8] auf die Multipolaritäten der verschiedenen γ -Übergänge, soweit sie aus Konversionsmessungen erschlossen werden konnten [5], [6], [7]. Eine weitere Stütze erhält diese Zuordnung dadurch, daß sich die ersten drei und der fünfte angeregte Zustand mit den angenommenen Drehimpuls- und Anregungsenergien gut in das Bohr-Mottelson-Modell einordnen: die Terme bei 8, 118, 119 und 335 keV lassen sich als Rotations-terme zum Rumpfdrehimpuls $K = \frac{1}{2}$ mit den Gesamtdrehimpulsen $I = K, K + \frac{1}{2}, K + \frac{3}{2}$, usw. auffassen [5], [6], [9]. Der 317 keV-Term

paßt dagegen mit seinem Energiewert nicht zu dieser Rotationsleiter; er muß einer anderen Nukleonenkonfiguration angehören*. Sein Drehimpuls ergibt sich aus den Multipolaritäten der von ihm ausgehenden γ -Linien 199 keV und 178 keV zu $I = \frac{7}{2}$ [5], [6], [9].

Um die Richtigkeit dieser Multipol- und Drehimpulszuordnung zu prüfen, erschien es zweckmäßig, die Winkelkorrelationen der in Fig. 1 hervorgehobenen γ - γ -Kaskaden zwischen den Termen bei 317, 139

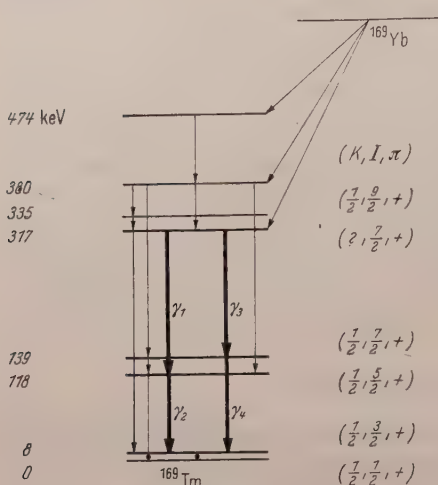


Fig. 1

Fig. 1. Das Termschema des ^{169}Tm [7]. Die in dieser Arbeit untersuchten γ - γ -Kaskaden $\gamma_1 - \gamma_2$ und $\gamma_3 - \gamma_4$ sind verstärkt eingezeichnet. Diesen Linien wurden bisher die folgenden Energiewerte und Multipolaritäten zugeordnet: γ_1 199 keV $M1 + E2$ oder $M1$; γ_2 110 keV $M1 + E2$ oder $M1$; γ_3 178 keV $M1 + E2$ oder $M1$; γ_4 131 keV $E2$

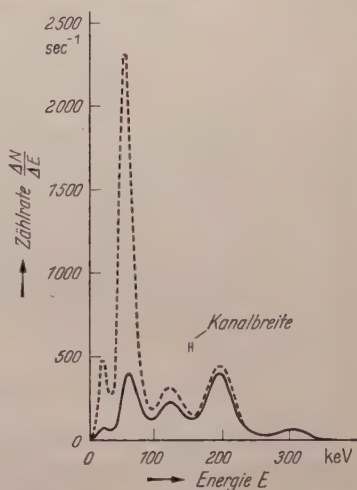


Fig. 2 a

Fig. 2a. γ -Spektrum des ^{169}Tm , aufgenommen mit einem Einkanal-Szintillationspektrometer ohne Absorber (gestrichelte Kurve); mit 1 mm Messing-Absorber (ausgezogene Kurve)

und 8 keV (178/131 keV-Kaskade) einerseits und zwischen den Termen bei 317, 118 und 8 keV (199/110 keV-Kaskade) andererseits zu untersuchen. Die dazu notwendigen Messungen werden dadurch begünstigt, daß diese Übergänge im ^{169}Tm -Spektrum, abgesehen von der K -Strahlung, mit einer wesentlich größeren Häufigkeit als alle anderen γ -Linien auftreten (vgl. Fig. 2a). Die vorliegende Arbeit berichtet über eine solche Untersuchung; ihr Ergebnis bestätigt die vorgeschlagene Zuordnung für die Drehimpulswerte der Terme bei 8, 118, 139 und 317 keV und die Multipolaritäten der γ -Übergänge von 110, 131, 178 und 199 keV [6]. Zusätzlich hierzu können noch einige Aussagen über den Mischungscharakter dieser Linien gemacht werden.

* Auch die Lebensdauer von $0,7 \mu\text{sec}$ [2], [3], [7], [10] spricht dafür, daß dieser Zustand eine Nukleonenkonfiguration hat, die von der der anderen Terme abweicht.

II. Präparat

Als γ -Quelle wurde Yb_2O_3 verwendet, das im Reaktor (Harwell, England) 7 Wochen lang mit Neutronen bestrahlt worden war*. Zur Identifizierung des Isotops wurden das γ -Spektrum, die γ - γ -Koinzidenzspektren und die Halbwertszeit des Präparates mit Szintillationspektrometern überprüft. Die Ergebnisse dieser Messungen stimmen mit den bekannten Informationen über die ^{169}Tm - γ -Strahlung überein. Fig. 2a zeigt das gemessene Spektrum (gestrichelte Kurve). Die intensive Linie bei 60 keV entspricht der K-Strahlung des ^{169}Tm . Sie bildet bei den später beschriebenen Messungen nur einen störenden Untergrund und begrenzt wegen der endlichen Auflösungszeit der Spektrometer die verwendbare Quellstärke des Präparates. Die Zähler wurden deshalb zur Schwächung der K-Strahlung mit je einem 1 mm starken Messing**-Absorber versehen. Die ausgezogene Kurve in Fig. 2a zeigt das durch den Absorber veränderte Spektrum. Die beiden „peaks“ bei 122 und 194 keV enthalten die Linienpaare 110/131 keV und 178/199 keV; sie lassen sich mit einem Szintillationsspektrometer nicht voneinander trennen***. Ihre Komponenten sind unter Berücksichtigung der bereits bekannten Intensitätsverhältnisse [5] in Fig. 2b (Spektrum mit Absorber) punktiert eingezeichnet†.

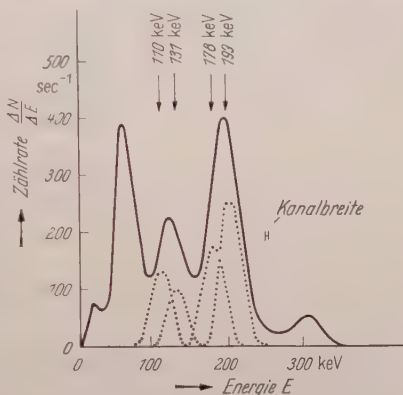


Fig. 2b. Analyse des Spektrums mit Absorber. Die punktierten Linien deuten die Komponenten bei 110 keV und 131 keV bzw. bei 178 keV und 199 keV an, aus denen sich die „peaks“ zusammensetzen

III. Versuchsanordnung

Zur Messung der Winkelkorrelationen der beiden Kaskaden sind zwei in Koinzidenz geschaltete γ -Spektrometer erforderlich. Diese Spektro-

* Wegen der bei der Neutronenbestrahlung gleichzeitig entstehenden Aktivität des Isotops ^{175}Yb ($T_{1/2} = 4 d$) wurden die Messungen erst 8 Wochen nach der Aktivierung durchgeführt.

** Messing ist für die gewünschte Absorption besonders gut geeignet, weil der Absorptionsquerschnitt von Cu und Zn in dem Energiebereich zwischen 150 und 50 keV besonders stark ansteigt (vgl. Fig. 2a).

*** Die Auflösung eines Szintillationsspektrometers dürfte in diesem Energiebereich bei etwa 18% liegen.

† Da der Wirkungsquerschnitt für Compton-Effekt in diesem Energiebereich klein ist gegen den Wirkungsquerschnitt für Photoeffekt, sind nur die „photopeaks“ eingezeichnet.

meter sollten nach Möglichkeit eine so hohe Energieauflösung haben, daß sich sowohl die beiden Linien bei 178 und 199 keV als auch die beiden Linien bei 110 und 131 keV voneinander trennen lassen. Eine solche Auflösung läßt sich aber mit einem Szintillationsspektrometer nicht erreichen (vgl. Fig. 2). Um trotzdem die beiden Kaskaden möglichst gut voneinander getrennt untersuchen zu können, ist es notwendig, die beiden Spektrometer mit möglichst kleiner Kanalbreite auf die einander entsprechenden Flanken der beiden „peaks“ in Fig. 2b einzustellen. Diese

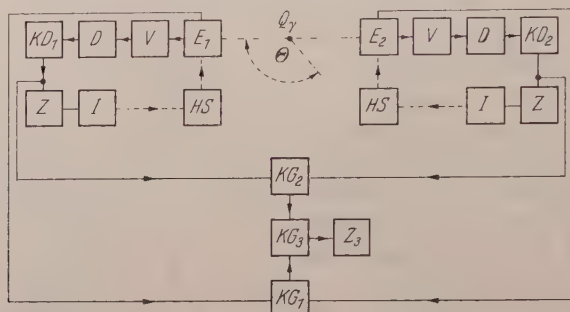


Fig. 3. Blockschaltbild der verwendeten Apparatur. Impulsleitungen bzw. Regelspannungsleitungen sind ausgezogen bzw. gestrichelt dargestellt. Es bezeichnen: Q_γ Präparat; $E_{1,2}$ Quantenempfänger (Szintillationskristall mit Multiplier); V Verstärker (Proportionalverstärker); D Dehner; $KD_{1,2}$ Einkalndiskriminator; Z Zählleinrichtung; I Integrationsstufe; HS regelbare Hochspannungsversorgung; $KG_{1,2,3}$ Koinzidenzgerät

Einstellung ist aber nur schwer über längere Zeiten hin aufrechtzuerhalten; sie ist sehr empfindlich gegen zeitliche Schwankungen des Eichfaktors der Apparatur (Eichfaktor = $\frac{\text{Impulsgröße}}{\text{Quantenenergie}}$). Die wesentliche Ursache hierfür ist die Temperaturabhängigkeit der Multiplier-Verstärkung*. Um trotzdem über längere Zeiten messen zu können, muß der Eichfaktor der beiden Spektrometer durch jeweils eine Regelung konstant gehalten werden. Fig. 3 zeigt das Blockschaltbild der gesamten Anlage. Die in den Empfängern E_1 und E_2 (Szintillationskristalle mit Multipliern; E_1 ist fest montiert, während sich E_2 auf einem Kreis, dessen Zentrum die γ -Quelle Q_γ bildet, bewegen läßt) gebildeten Signalimpulse werden in üblicher Weise zwei Kanaldiskriminatoren KD_1 und KD_2 zugeführt. Sie werden von dort zu einem Koinzidenzgerät KG_2 (Koinzidenzauflösungszeit $\tau = 5 \cdot 10^{-7}$ sec) geleitet. Daneben wird zur Festlegung der Gesamtkoinzidenzauflösungszeit eine Koinzidenzanordnung KG_1 (Koinzidenzauflösungszeit $\tau = 6 \cdot 10^{-9}$ sec) verwendet. Die Informationen der beiden Koinzidenzgeräte werden in KG_3 miteinander gekoppelt. Z_3 zählt die endgültige Koinzidenzrate. Die anderen Schalt-

* $\frac{\Delta V}{V \cdot \Delta T} \approx -1\% \cdot \text{Grad}^{-1}$ V = Impulsgröße; T = Temperatur.

blöcke dienen zur Regelung. Die auf die (fest eingestellten) Kanäle entfallenden Impulsraten werden mit den Zähleinrichtungen Z^* laufend ermittelt. Die nachgeschalteten Integratorstufen I (Integrationszeit einstellbar zwischen etwa 10 und 500 sec) verwandeln die Zählergebnisse in — den eventuellen Impulsratenänderungen entsprechende — Spannungen, die als Stellgrößen für die Hochspannungsversorgungsgeräte HS der beiden Multiplier verwendet werden.

Den Änderungen der Impulsgröße und den damit verbundenen Änderungen der Zählraten wird so durch eine entsprechende Nachsteuerung der Hochspannung entgegengewirkt. Es gelang auf diese Weise, die Zählrate der auf den Flanken der „peaks“ eingestellten Spektrometer über Tage auf $\pm 5\%$ konstant zu halten**.

IV. Messungen

Vor der eigentlichen Messung der Winkelkorrelationen wurde durch eine Hilfsmessung überprüft, inwieweit mit der in II. beschriebenen Flankeneinstellung der Kanäle der beiden Spektrometer die Messung der Winkelkorrelationen jeder der beiden Kaskaden für sich durchgeführt werden kann. Zu diesem Zweck wurde die Anisotropie $\frac{K(180^\circ) - K(90^\circ)}{K(90^\circ)}$ der wahren Koinzidenzrate $K(\theta)$ *** bei sieben verschiedenen Einstellungen der Kanäle der beiden Spektrometer gemessen. Der Kanal des einen Spektrometers wurde hierbei nacheinander in Richtung kleiner werdender Energien auf sieben verschiedene Stellen des 110/131 keV-„peaks“ eingestellt, während der Kanal des anderen Spektrometers gleichzeitig auf sieben entsprechende Stellen des 178/199 keV-„peaks“ in Richtung größer werdender Energien gesetzt wurde. Fig. 4 stellt das zusammengefaßte Ergebnis dieser Messungen dar (bezüglich der jeweiligen Kanaleinstellungen vgl. Kopfleiste der Fig. 4). Man erkennt, daß die Anisotropie in deutlich ausgeprägter Weise von der Einstellung der beiden Kanäle abhängt und in zwei verschiedene Grenzwerte übergeht. Infolgedessen ist es berechtigt anzunehmen, daß in den horizontal verlaufenden Bereichen der Meßkurve, d.h. etwa bei denjenigen Einstellungen der beiden Kanäle, die den Fig. 4a und 4c entsprechen, die beiden

* Siehe CAPPELLER, U., u. W. ZIMMERMANN: Z. angew. Phys. **9**, 317 (1957).

** Der bei diesem Verfahren erzielte Regelfaktor (er lag bei diesen Messungen zwischen 20 und 50) hängt davon ab, an welcher Stelle des Spektrums gemessen wird. Das Verfahren setzt außerdem voraus, daß die Halbwertszeit des untersuchten Strahlers groß gegen die Meßdauer ist; das Gerät kann nicht unterscheiden, aus welchem Grunde sich die im Kanal festgestellte Zählrate ändert. Es würde im Falle einer kurzen Halbwertszeit die Flankeneinstellung des Kanals unter Konstanthaltung der Zählrate so lange nachregeln, bis der Kanal die Spitze der Linie erreicht hätte.

*** Zur Definition der wahren Koinzidenzrate $K(\theta)$ s. weiter unten.

Kaskaden innerhalb der Meßgenauigkeit voneinander getrennt sind (vgl. auch Fig. 2b). Dementsprechend sind zur Messung der Winkelkorrelationen die beiden Kanalkombinationen, die in Fig. 4 durch α (178/131 keV-Kaskade) und β (199/110 keV-Kaskade) markiert sind, gewählt worden. Im einzelnen erfolgte dann die Messung der Koinzidenzrate $N_K(\theta)$ (Zähler Z_3 in Fig. 3) in Schritten von 10° im Winkelbereich zwischen

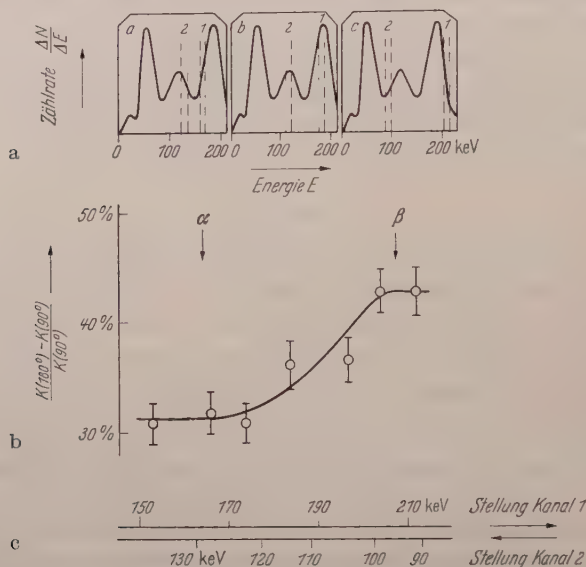


Fig. 4 a—c. Anisotropie der γ - γ -Koinzidenzen des ^{180}Tm in Abhängigkeit von der Kanaleinstellung der beiden Spektrometer. Die Figur stellt die gemessene Anisotropie in Abhängigkeit von der Kanalkombination der beiden Spektrometer 1 und 2 dar. Man bemerke, daß die Abszisse in Fig. 4 aus zwei gegensinnig ansteigenden Energieachsen besteht; zwei übereinander gelegene Punkte der beiden Achsen ergeben die jeweils gewählte Kanalkombination der beiden Spektrometer 1 und 2 (vgl. die Teilfiguren 4a, b und c und die Fig. 2b). Die endgültige Messung der beiden Winkelkorrelationen (vgl. Fig. 5) wurde bei den durch α und β markierten Kanalkombinationen der beiden Spektrometer 1 und 2 vorgenommen.

$\theta = 90^\circ$ und $\theta = 180^\circ$. Von dieser gemessenen Koinzidenzrate $N_K(\theta)$ wurde jeweils die isotrope zufällige Koinzidenzrate Z^* subtrahiert. Fig. 5a zeigt das Meßergebnis $K(\theta) = N_K(\theta) - Z$. Die ausgezogenen Kurven in Fig. 5a sind aus den Meßwerten nach der Methode der kleinsten Quadrate ermittelt worden. Aus diesen Ausgleichskurven wurden dann die Funktionen $\varepsilon^\circ(\theta) = \frac{K(\theta) - K(90^\circ)}{K(90^\circ)}$ gebildet und in Fig. 5b dargestellt. Diese Funktionen $\varepsilon^\circ(\theta)$ entsprechen wegen der endlichen Öffnung der Empfänger noch nicht den wahren Winkelkorrelationen. Die entsprechend den Berechnungen von ROSE [11] korrigierten Kurven $\varepsilon(\theta)$

* Das Verhältnis Z/N_K war stets kleiner oder gleich 0,04. Zur Bestimmung von Z s. Abschnitt V.

sind in Fig. 5b gestrichelt eingezeichnet; sie sind das endgültige Meßergebnis, das zur theoretischen Auswertung der Messungen benutzt wird.

Um sicher zu sein, daß mit einer Störung der Winkelkorrelation durch magnetische oder elektrische Beeinflussung des Kernes im Zwischen-

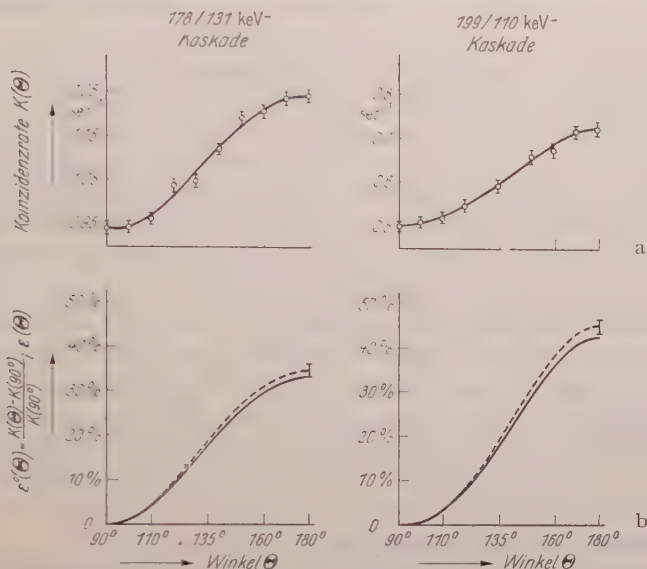


Fig. 5 a u. b. Die Winkelkorrelationen der „getrennten“ γ - γ -Kaskaden. In den beiden Fig. 5a ist die Koinzidenzrate $K(\Theta) = N_k(\Theta) - Z$ mit Angabe des statistischen Fehlers Φ aufgetragen. Die Ausgleichskurven wurden nach der Methode der kleinsten Quadrate berechnet. Die Fig. 5b zeigen die Funktionen $\epsilon''(\Theta)$ (Def. vgl. Abschn. IV) und die bezüglich des Öffnungsfehlers der beiden Empfänger korrigierten Kurven $\epsilon(\Theta)$ (gestrichelte Kurven)

zustand der Kaskaden nicht zu rechnen ist, wurden Messungen mit verzögerten Koinzidenzen durchgeführt. Eine Änderung der Anisotropie wurde bei Verzögerungszeiten bis zu $4 \cdot 10^{-9}$ sec nicht beobachtet.

V. Meßgenauigkeit und Fehlerquellen

Zur Ausmessung der Winkelkorrelationen wurden bei den zehn verschiedenen Winkeln zwischen $\Theta = 90^\circ$ und $\Theta = 180^\circ$ im Falle der 199/110 keV-Kaskade jeweils mindestens 2000 und im Falle der 178/131 keV-Kaskade jeweils mindestens 8000 Koinzidenzimpulse gezählt*, so daß jeder Meßpunkt in Fig. 5a mit einer statistischen Genauigkeit von $\approx \pm 2,5\%$ bzw. $\approx \pm 1,5\%$ bestimmt ist. Danach wurde durch voneinander unabhängige Bestrahlung der beiden Empfänger mit gleichen γ -Quellen die zufällige Koinzidenzrate Z gezählt und von der gemessenen

* Da die 178/131 keV-Kaskade intensiver als die 199/110 keV-Kaskade auftritt, konnten bei der Messung ihrer Winkelkorrelation mehr Koinzidenzimpulse ausgezählt werden.

Koinzidenzrate $N_K(\theta)$ subtrahiert. Da Z auf diese Weise genügend genau ermittelt werden konnte und außerdem Z immer kleiner oder gleich $0,04 N_K(\theta)$ war, konnte auch $K(\theta) = N_K(\theta) - Z$ auf ungefähr $\pm 2,5$ bzw. $\pm 1,5\%$ genau bestimmt werden. In ähnlicher Weise ist auch bei den Anisotropiemessungen zu Fig. 4 verfahren worden. Der statistische Fehler der Anisotropiewerte beträgt $\approx \pm 1,5\%$.

Eine mögliche Verfälschung der Winkelkorrelationsmessung beruht auf Störkoinzidenzen durch Compton-Rückstreuung. Diese Koinzidenzen wurden durch eine entsprechende Pb-Armierung der Empfänger unterdrückt. Die dann bei $\theta \approx 180^\circ$ noch möglichen Rückstreuungsprozesse werden nicht registriert; die Energien der hier auftretenden γ -Strahlung verteilen sich nämlich für $\theta \approx 180^\circ$ niemals so auf Compton-Streuquant und Compton-Elektron, daß sie bei diesen Messungen gleichzeitig den Kanälen der beiden Spektrometer entsprechen.

Schließlich ist noch eine Störung der Winkelkorrelationsmessung durch Konversionselektron—Konversionselektron- bzw. Konversionselektron— γ -Koinzidenzen denkbar, weil die γ -Strahlung des ^{169}Tm merklich konvertiert ist [5]. Die Konversionselektronen werden aber in dem dünnen Plexiglasmantel, in dem die Probe lagert und schließlich durch den bereits erwähnten 1 mm starken Messing-Absorber zur Schwächung der K -Strahlung und in der 0,5 mm starken Al-Fassung des Szintillationskristalls absorbiert.

Die Korrektur der Öffnungsfehler wurde bereits im vorigen Abschnitt erwähnt; sie war notwendig, weil die Richtung γ -Quelle—Empfänger bei diesen Untersuchungen nur auf $\pm 10,5^\circ$ festgelegt war. Der damit verbundene Öffnungsfehler mußte in Kauf genommen werden, weil eine Vergrößerung des Abstandes γ -Quelle—Empfänger die Koinzidenzraten zu stark herabgedrückt hätte.

Eine Korrektur, welche die endliche Ausdehnung der Probe berücksichtigt, war nicht nötig, weil die Linearabmessungen des Präparates kleiner als 1 mm waren bei einer Entfernung von 87 mm zwischen der Probe und den beiden Empfängern.

VI. Deutung der Meßergebnisse

Die theoretische Behandlung der Winkelkorrelationen zeigt [13], [15], daß sich die Winkelkorrelation einer γ — γ -Kaskade ganz allgemein durch einen Ausdruck der Form

$$W(\theta) = 1 + \sum_{\nu} A_{2\nu} \cos^{2\nu} \theta \quad (1)$$

darstellen läßt. Die Koeffizienten $A_{2\nu}$ können dabei ganz verschieden sein, je nach Art und Mischung der Multipolanteile und Größe der Drehimpulswerte der Kaskade. Im Falle reiner Übergänge sind die Koeffizienten $A_{2\nu}$ Funktionen der beiden Multipolordnungen L_1 und L_2 und

der Drehimpulse j_1 , j und j_2 der drei an der Kaskade beteiligten Niveaus des Kernes. Bei gemischten Übergängen hängen die $A_{2\nu}$ außerdem noch von den zu L_1 und L_2 hinzutretenden Multipolanordnungen L'_1 und L'_2 und den Parametern δ_1 und δ_2 , welche die Beimischung dieser Multipolanteile beschreiben, ab. Die δ_ν sind dabei durch

$$\delta_\nu = \frac{\langle j_\nu || L'_\nu || j \rangle}{\langle j_\nu || L_\nu || j \rangle}; \quad \nu = 1, 2$$

definiert, wobei die $\langle j_\nu || L_\nu || j \rangle$ jeweils die reduzierten Matrixelemente für die beiden Übergänge darstellen.

Zur Deutung der Meßergebnisse wurden deshalb die gemessenen Winkelkorrelationen, d.h. die Funktionen $\varepsilon(\Theta) + 1$ durch Reihen der Form

$$\varepsilon(\Theta) + 1 = 1 + \sum_\nu B_{2\nu} \cos^{2\nu} \Theta \quad (2)$$

dargestellt. Ein Vergleich der Koeffizienten $B_{2\nu}$ der gemessenen Winkelkorrelationen mit den aus den Tabellen von ROSE und BIEDENHARN [15] ermittelten Koeffizienten führt zu folgenden Ergebnissen*:

178/131 keV-Kaskade: Bei der Darstellung der Meßergebnisse der 178/131 keV-Kaskade nach Gl. (2) erhält man die Koeffizienten

$$B_2 = 0,388 \quad \text{und} \quad B_4 = -0,043.$$

Hierzu ist zu bemerken, daß dem Meßergebnis zwar der Wert für $B = B_2 + B_4 = 0,345$ mit der Genauigkeit von $\pm 0,014$ entnommen werden kann, daß aber die Koeffizienten B_2 und B_4 allein mit einer größeren Unsicherheit behaftet sind.

Zum Vergleich sind in Tabelle 1 alle Kaskaden zusammengefaßt, deren Anisotropien $A = A_2 + A_4$ in der Nähe des Meßwertes $B = 0,345 \pm 0,014$ liegen [15] und die aus reinen Multipolübergängen L_1 und L_2 mit $L_1, L_2 \leq 2$ bestehen**. Man sieht, daß die bisher vorgeschlagene Drehimpuls-Multipolzuordnung $\frac{7}{2}$ Dipol $\frac{7}{2}$ Quadrupol $\frac{3}{2}$ [5] (vgl. Fig. 1) für die Kaskade zwischen den Termen bei 317, 139 und 8 keV durch die vorliegende Messung bestätigt wird ($B = 0,345 \pm 0,014$; $A = 0,341$). Die anderen Anisotropiewerte A in Tabelle 1 approximieren den Meßwert B wesentlich schlechter. Da jedoch B wegen des Meßfehlers nur auf einen endlichen Bereich ($0,331 \leq B \leq 0,359$) eingengt werden kann, ist noch der Fall in Betracht zu ziehen, daß die Kaskade aus gemischten Übergängen besteht. Hierfür gelten folgende Betrachtungen: Bei der Emission

Tabelle 1

j_1	L_1	j	L_2	j_2	A
$\frac{7}{2}$	1	$\frac{7}{2}$	2	$\frac{3}{2}$	0,341
$\frac{3}{2}$	2	$\frac{7}{2}$	1	$\frac{7}{2}$	0,341
$\frac{1}{2}$	2	$\frac{3}{2}$	1	$\frac{3}{2}$	0,333
$\frac{3}{2}$	1	$\frac{3}{2}$	2	$\frac{1}{2}$	0,333

* Bezüglich der Genauigkeit der Ergebnisse vgl. Anhang.

** Höhere Multipole als elektrische und magnetische Quadrupole ($L = 2$) wurden wegen ihrer nur kleinen Übergangswahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt.

des 131 keV-Quants ändert sich der Drehimpuls des ^{169}Tm -Kernes von $j = \frac{7}{2}$ nach $j_2 = \frac{3}{2}$. Demnach muß die Multipolordnung der 131 keV-Strahlung größer oder gleich 2 sein. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit den Aussagen anderer Autoren [5], [6], [7], welche ausnahmslos die 131 keV-Linie auf Grund von Konversionskoeffizientenmessungen als reine $E2$ -Strahlung identifizieren. Die 178 keV-Linie hingegen wurde bisher als reiner $M1$ - [5] oder gemischter $M1 + E2$ -Übergang [6], [7] angesprochen. MIHELICH [7] u. a. geben die Mischung 90% $M1 + 10\%$ $E2$ an. Um zu prüfen, welches Mischungsverhältnis mit den in dieser

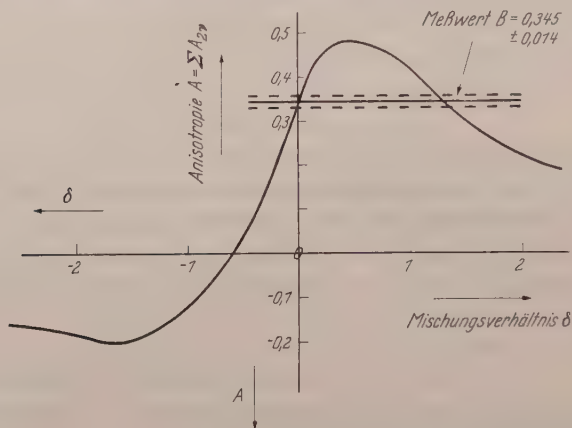


Fig. 6. Theoretischer Wert der Anisotropie A für die γ - γ -Kaskade $\frac{7}{2} M1 + E2 \frac{7}{2} E2 \frac{3}{2}$ in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis δ des $M1 + E2$ -Überganges. Die Kurve durchläuft den durch den Meßwert $B = 0,345 \pm 0,014$ vorgegebenen Bereich $0,331 \leq A \leq 0,359$ bei $\delta = 0$ und bei $\delta = 1,3$

Arbeit beschriebenen Messungen vertretbar ist, wurde die nach der Theorie berechnete Anisotropie A für eine $\frac{7}{2} (M1 + E2) \frac{7}{2} (E2) \frac{3}{2}$ -Kaskade in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis δ ($\delta = \frac{\langle \frac{7}{2} || E2 || \frac{7}{2} \rangle}{\langle \frac{7}{2} || M1 || \frac{7}{2} \rangle}$) der 178 keV-Linie in Fig. 6 aufgetragen. Außerdem ist dort die für die 178/131 keV-Kaskade gemessene Anisotropie $B = 0,345 \pm 0,014$ eingetragen. Man sieht, daß innerhalb der Fehlergrenzen nur Werte um $\delta = 0$ bzw. $\delta = 1,3$ in Frage kommen. $\delta = 1,3$ scheidet aber aus, weil die dazu gehörenden Werte $A_2 = -0,15$ und $A_4 = 0,49$ ($A_2 + A_4 = 0,34$) im Widerspruch zu den Meßwerten $B_2 = 0,388$ und $B_4 = -0,043$ stehen (für $\delta = 0$ ist auch $A_4 = 0$).

Das Meßergebnis läßt sich daher wie folgt interpretieren: Die 178/131 keV-Kaskade besteht praktisch aus den reinen Übergängen $M1$ und $E2$ zwischen Niveaus mit den Drehimpulsen $\frac{7}{2}$, $\frac{7}{2}$ und $\frac{3}{2}$. Im Rahmen des Meßfehlers kann bei der 178 keV-Linie eine $E2$ -Beimischung von höchstens 1% zugelassen werden.

199/110 keV-Kaskade: In diesem Falle ergeben sich für die Koeffizienten $B_{2\nu}$ [Gl. (2)] folgende Werte:

$$B_2 = 0,309 \quad \text{und} \quad B_4 = 0,144$$

mit

$$B = B_2 + B_4 = 0,453 \pm 0,015.$$

Für die Unsicherheit von B_2 und B_4 gilt das oben Gesagte.

In Tabelle 2 sind wiederum alle theoretisch möglichen Kaskaden mit reinen Übergängen bis zur Ordnung $L = 2$ zusammengestellt [15], deren Anisotropiewerte A in der Nähe des Meßwertes $B = 0,453 \pm 0,015$ liegen und mit halbzahligen Drehimpulsen des Kernes verknüpft sind. Abgesehen davon, daß man überhaupt keine theoretischen Kombinationen findet, deren Anisotropien A innerhalb der Fehlerbreite von $\pm 0,015$ um die gemessene Anisotropie $B = 0,453$ liegen, findet sich keine Kaskade mit $j_1 = \frac{7}{2}$ und $j_2 = \frac{3}{2}$; diese Werte wurden aber bereits durch die 178/131 keV-Kaskade, welche Anfangs- und Endzustand mit der 199/110 keV-Kaskade gemeinsam hat, bestätigt. Als einzige Deutung dieses Ergebnisses bleibt daher die Annahme gemischter Übergänge. Auch CORK [6] u. Mitarb. nehmen schon auf Grund von gemessenen Konversionskoeffizienten für beide Linien $M1 + E2$ -Strahlung an, ohne Angaben über die Mischungsverhältnisse zu machen, während MIHELICH [7] u. Mitarb. folgende Mischungsverhältnisse angeben:

$$199 \text{ keV: } 87\% \text{ } M1 + 13\% \text{ } E2 \quad (\delta_1 = 0,38)$$

$$110 \text{ keV: } 98\% \text{ } M1 + 2\% \text{ } E2 \quad (\delta_2 = 0,14).$$

Nur JOHANSSON [5] identifiziert die beiden Linien als reine $M1$ -Übergänge.

Im folgenden soll nun diskutiert werden, zu welchen Mischungsverhältnissen die hier vorliegenden Messungen führen. Zu diesem Zweck sind in Fig. 7 in einer $\delta_1 - \delta_2$ -Ebene

$$\delta_1 = \frac{\langle \frac{7}{2} || E2 || \frac{5}{2} \rangle}{\langle \frac{7}{2} || M1 || \frac{5}{2} \rangle} \quad \delta_2 = \frac{\langle \frac{5}{2} || E2 || \frac{3}{2} \rangle}{\langle \frac{5}{2} || M1 || \frac{3}{2} \rangle}$$

die Kurven eingezeichnet, welche sich aus der Bedingung $A = A_2 + A_4 = 0,453$ ergeben. Außerdem ist in Fig. 7 angedeutet, wie sich die Kurven bei einer Änderung von A um $\pm 0,015$ verschieben würden. Fig. 7 bedeutet also, daß alle Wertepaare (δ_1, δ_2) , welche durch die beiden Kurven oder ihre durch die Meßgenauigkeit abgegrenzte Nachbarschaft verknüpft werden, mit der gemessenen Anisotropie $B = 0,453 \pm 0,015$ vereinbar sind. Außerdem sind die beiden Kurven mit A_4 als Parameter

Tabelle 2

j_1	L_1	j	L_2	j_2	A
$\frac{1}{2}$	1	$\frac{3}{2}$	1	$\frac{1}{2}$	0,429
$\frac{1}{2}$	2	$\frac{3}{2}$	2	$\frac{1}{2}$	0,429

den mittleren Fehler bei der Ausgleichung der Meßwerte nur wenig verändern (vgl. Abschn. VI, unten). Endgültige Werte für δ_1 und δ_2 lassen sich nur durch eine viel genauere Vermessung des Verlaufs der Winkelkorrelation festlegen.

Mit Sicherheit kann jedoch auf Grund der Winkelkorrelationsmessungen beider Kaskaden folgendes gesagt werden:

Den an der 199/110 keV-Kaskade beteiligten Niveaus bei 8, 118 und 317 keV (vgl. Fig. 1) sind die Drehimpulse $\frac{3}{2}$, $\frac{5}{2}$ und $\frac{7}{2}$ zuzuordnen. Die beiden Übergänge oder mindestens der 199 keV-Übergang müssen als $M1 + E2$ -Mischungen angesehen werden. Eine Mischung der 110 keV-Linie bei reiner $M1$ -Strahlung der 199 keV-Linie oder überhaupt eine reine $M1 - M1$ -Kaskade widersprechen der gemessenen Winkelkorrelation (die Kurven in Fig. 7 meiden die δ_2 -Achse, d. h. $\delta_1 = 0$, bzw. reine $M1$ -Strahlung der 199 keV-Linie ist nicht möglich).

Zur endgültigen Klärung der Mischungsverhältnisse wäre, da auch eine beliebig genaue Ausmessung des Verlaufs der Winkelkorrelation stets eine Mehrdeutigkeit der möglichen δ_1 , δ_2 -Wertepaare offen ließe, die Beschaffung weiterer Informationen nützlich. Hierzu könnte etwa die Messung der entsprechenden Polarisations-Winkelkorrelationen oder der Konversionselektron-Konversionselektron- bzw. Konversionselektron- γ -Winkelkorrelationen herangezogen werden.

Anhang

Zur Genauigkeit der Koeffizienten B_2 und B_4

Um die Koeffizienten B_2 und B_4 zu ermitteln und ihre Genauigkeit abzuschätzen, wurden die Meßergebnisse beider Kaskaden sowohl mit einem Ansatz

$$W(\Theta) = 1 + B_2 \cos^2 \Theta$$

als auch mit einem Ansatz

$$W(\Theta) = 1 + B_2 \cos^2 \Theta + B_4 \cos^4 \Theta$$

nach der Methode der kleinsten Quadrate dargestellt. Dabei ergaben sich die Werte: (178/131 keV-Kaskade)

$$B_2 = 0,388 \quad \text{und} \quad B_4 = -0,043$$

mit

$$B = B_2 + B_4 = 0,345 \pm 0,014$$

bzw. $B_2 = 0,347$ für den Fall des Ansatzes, der nach dem Glied mit $\cos^2 \Theta$ abbricht ($B_4 = 0$). Daß sich nur ein kleiner B_4 -Wert ergibt, stimmt damit überein, daß die Meßkurve (Fig. 5) praktisch symmetrisch bezüglich des Wertes bei $\Theta = 135^\circ$ verläuft (d. h. reine $\cos^2 \Theta$ -Abhängigkeit). Die Summe der Fehlerquadrate $[\nu]$ ist dementsprechend auch nahezu unabhängig von der Wahl des Ansatzes. Das heißt, daß B_4

sicher im Bereich $-0,06 \leq B_4 \leq 0,06$ liegen kann und dementsprechend B_2 im Bereich $0,29 \leq B_2 \leq 0,41$. Genauere Eingrenzungen für B_2 und B_4 lassen sich nicht angeben, obwohl $B = B_2 + B_4$ viel genauer angegeben werden kann. (Der Grund hierfür ist folgender: die relative Änderung der Koinzidenzrate zwischen $\Theta = 90^\circ$ und $\Theta = 180^\circ$, d.h. die Größe $B_2 + B_4$, läßt sich den Meßkurven in Fig. 5 verhältnismäßig genau entnehmen, während der genaue Verlauf der Meßkurven im Bereich $90^\circ < \Theta < 180^\circ$ nur sehr schwach vom Verhältnis B_2/B_4 abhängt (bei konstantem $B_2 + B_4$) und daher viel genauer bekannt sein müßte.

Für die 199/110 keV-Kaskade wurde das gleiche Verfahren angewendet. Hier stellte sich heraus, daß die Summe der Fehlerquadrate $[\nu\nu]$ beim Ansatz

$$W(\Theta) = 1 + B_2 \cos^2 \Theta$$

etwa doppelt so groß wurde wie beim Ansatz

$$W(\Theta) = 1 + B_2 \cos^2 \Theta + B_4 \cos^4 \Theta.$$

Als optimale Werte wurden

$$B_2 = 0,309 \quad \text{und} \quad B_4 = 0,144$$

ermittelt. Dies stimmt mit der leichten Asymmetrie der Meßkurve für die 199/110 keV-Kaskade (Fig. 5) bezüglich des Wertes bei $\Theta = 135^\circ$ überein. Auch bei dieser Kaskade können die Werte B_2 und B_4 selbst nicht so genau angegeben werden, obwohl $B = B_2 + B_4 = 0,453 \pm 0,015$ wiederum viel genauer bekannt ist. Insbesondere läßt sich B_4 höchstens auf den Bereich $0,06 \leq B_4 \leq 0,22$ bzw. B_2 auf den Bereich $0,23 \leq B_2 \leq 0,39$ einengen. (Wenn B_4 die Grenzen 0,06 bzw. 0,22 annimmt, vergrößert sich $[\nu\nu]$ etwa auf das 1,5fache des Wertes bei $B_4 = 0,144$).

Herrn Professor Dr. W. WALCHER danken wir für zahlreiche anregende Diskussionen.

Literatur

- [1] CORK, J.M., H.B. KELLER, W.C. RUTLEDGE and A.E. STODDARD: Phys. Rev. **78**, 95 (1950). — [2] SUNYAR, A.W., and I.W. MIHELICH: Phys. Rev. **81**, 300 (1950). — [3] MARTIN jr., DON S., ERLING N. JENSEN, FRANCIS J. HUGHES and R.T. NICHOLS: Phys. Rev. **82**, 579 (1951). — [4] HEYDENBURG, N.P., and G.M. TEMMER: Phys. Rev. **100**, 150 (1955). — [5] JOHANSSON, SVEN A.E.: Phys. Rev. **100**, 835 (1955). — [6] CORK, J.M., M.K. BRICE, D.W. MARTIN, L.C. SCHMID and R.G. HELMER: Phys. Rev. **101**, 1042 (1956). — [7] MIHELICH, J.W., T.J. WARD and K.P. JACOB: Phys. Rev. **103**, 1285 (1956). — [8] SCHÜLER, H., u. T. SCHMIDT: Naturwiss. **22**, 838 (1934). — [9] MOTTELSON, B.R., u. S.G. NILSSON: Z. Physik **141**, 217 (1955). — [10] BENEDETTI, S. DE, and F.K. MCGOWAN: Phys. Rev. **74**, 728 (1948). — [11] ROSE, M.E.: Phys. Rev. **91**, 610 (1953). — [12] GOERTZEL, G.: Phys. Rev. **70**, 897 (1946). — [13] HAMILTON, DONALD R.: Phys. Rev. **58**, 122 (1940). [14] ROSE, M.E.: Phys. Rev. **93**, 477 (1953). — [15] BIEDENHARN, L.C., and M.E. ROSE: Rev. Mod. Phys. **25**, 729 (1953). — [16] FRAUENFELDER, H.: In Kai Siegbahn, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy. Amsterdam: North Holland Publishing Co. 1955.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Heidelberg

Nukleonenpolarisation bei Strippingreaktionen *

Von

HANS-ARWED WEIDENMÜLLER

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 5. November 1957)

Ausgehend von dem üblichen Matricelement für Strippingreaktionen werden der Einfluß der Tensorkraft des Deuterons und der Abweichung von reiner $j-j$ -Kopplung für das eingefangene Nukleon auf die Polarisation der freigesetzten Nukleonen untersucht. Die Polarisation ist durch die Phasen der elastischen Streuung von Deuteron und freigesetztem Nukleon am Target- bzw. Endkern bestimmt. Der Einfluß dieser Streuphasen auf die Polarisation wird numerisch untersucht. Das Vorzeichen der Polarisation ist in der Definition (4) für kleine Winkel positiv oder negativ, wenn sich Spin $1/2$ und Bahndrehimpuls l des eingefangenen Nukleons zu $j = l - \frac{1}{2}$ oder $j = l + \frac{1}{2}$ koppeln.

Einleitung

(d, p) - und (d, n) -Reaktionen sind ein wichtiges Hilfsmittel in der Spektroskopie der leichten Kerne. Aus der Winkelverteilung der freigesetzten Nukleonen kann man auf den Bahndrehimpuls des eingefangenen Nukleons schließen¹. NEWNS² wies als erster darauf hin, daß die freigesetzten Nukleonen im allgemeinen polarisiert sein sollten. HOROWITZ und MESSIAH und CHESTON³ berechneten diese Polarisation unter verschiedenen Annahmen.

In jüngster Zeit berichteten mehrere Autoren⁴ über Messungen der Polarisation der bei Strippingreaktionen freigesetzten Nukleonen. Die Resultate stehen in Widerspruch zu den Ergebnissen von HOROWITZ und MESSIAH und stimmen bezüglich des Vorzeichens mit den Rechnungen von CHESTON überein. Die quantitative Übereinstimmung der

* Vorgetragen auf der Sitzung des Fachausschusses für Kernphysik anläßlich der Tagung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften in Heidelberg am 26. Oktober 1957.

¹ BUTLER, S. T.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **208**, 559 (1951). — BHATIA, A. B., K. HUANG, R. HUBY u. H. C. NEWNS: Phil. Mag. **43**, 485 (1952).

² NEWNS, H. C.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **66**, 477 (1953).

³ HOROWITZ, J., u. A. M. L. MESSIAH: J. Phys. Radium **14**, 731 (1953). — CHESTON, W. B.: Phys. Rev. **96**, 1950 (1954).

⁴ JUVELAND, A. C., u. W. JENTSCHKE: Bull. Amer. Phys. Soc. II **1**, Nr. 4, M 10 (1956). — JUVELAND, A. C.: University of Illinois thesis 1956 (unveröff.). — JENTSCHKE, W.: Private Mitteilung. — HILLMAN, P.: Phys. Rev. **104**, 176 (1956). — HENSEL, J. C., u. W. C. PARKINSON: Bull. Amer. Phys. Soc. II **2**, Nr. 4, UA 9 (1957).

Rechnungen von CHESTON, die für 3,29 MeV Deuteronenenergie durchgeführt wurden, mit der Messung von HILLMANN⁴ ist schlecht; außerdem enthält die Rechnung von CHESTON einige Irrtümer. Auf einen von ihnen hat bereits SAWICKI hingewiesen, auf einen anderen kommen wir in §4 zurück.

Aus den Messungen scheint hervorzugehen, daß das Vorzeichen der Polarisation* für kleine Winkel positiv oder negativ ist, je nachdem sich Spin $s = \frac{1}{2}$ und Bahndrehimpuls l des eingefangenen Nukleons zu $j = l - \frac{1}{2}$ oder $j = l + \frac{1}{2}$ koppeln. Es scheint deshalb wünschenswert, die Theorie weiterzuentwickeln, um eine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment und ein besseres Verständnis der experimentellen Daten im Hinblick darauf zu erreichen, welche Schlüsse man aus ihnen ziehen kann. Aus diesem Grunde wurde in der vorliegenden Arbeit der Einfluß der verschiedenen Effekte quantitativ untersucht, die zu einer Polarisation führen können, wenn man von dem üblichen Matrixelement für die Strippingreaktion⁵ ausgeht. Das sind: Die elastische Streuung der Deuteronen am Targetkern, die elastische Streuung der freigesetzten Nukleonen am Endkern, die Art der Kopplung für das eingefangene Nukleon, die Tensorkraft beim Deuteron. Coulomb- und Compound-kerneffekte, von denen die letzteren besonders bei niedriger Energie eine Rolle zu spielen scheinen⁶, wurden nicht berücksichtigt. Das Experiment von JENTSCHKE⁷, welches das vollständigste Experiment zur Polarisation ist, wurde quantitativ diskutiert.

§ 1. Die Polarisation

Der Einfachheit halber wollen wir im folgenden immer annehmen, das freigesetzte Nukleon sei ein Proton, obwohl wegen Vernachlässigung der Coulomb-Kräfte unsere Formulierung natürlich völlig symmetrisch in Neutron und Proton ist. Nach THOMAS** ist das Matrixelement einer Strippingreaktion die Summe aus zwei Termen:

$$U_{d,p} = U_{d,p}^{\text{Compound}}(\vec{k}_d, \vec{k}_p) + U_{d,p}^{\text{Stripping}}(\vec{k}_d, \vec{k}_p). \quad (1)$$

* Definition s. §1.

** THOMAS, R. G.: Siehe Fußnote 5. Für die (d,p) -Reaktion ist die Ableitung der Formel, wie THOMAS sie gibt, nicht ganz befriedigend, denn die Amplitude $U_{n;d}$ für das System ohne die Wechselwirkung ΔV ist Null, wenn ΔV die Wechselwirkung zwischen Neutron und Proton außerhalb eines festen Volumens bedeutet. Die Formel selbst ist allerdings richtig. Der Verfasser hofft, darauf in einer späteren Arbeit zurückzukommen.

⁵ THOMAS, R. G.: Phys. Rev. **100**, 25 (1955).

⁶ Vgl. z. B. RISSER, J. R., J. PRICE u. C. M. CLASS: Phys. Rev. **98**, 1183 (1955). McELLISTREM, M. T., K. W. JONES, REN CHIBA, R. A. DOUGLAS, D. F. HERRING u. E. A. SILVERSTEIN: Phys. Rev. **104**, 1008 (1957).

⁷ JUVELAND, A. C., u. W. JENTSCHKE: Siehe Fußnote 4 auf S. 389.

Dabei ist $U_{d,p}^{\text{Compound}}$ der Beitrag zu $U_{d,p}$, der vom Compoundkern herrührt. $U_{d,p}^{\text{Stripping}}$ ist das Matrixelement der „direkten Wechselwirkung“ in „modifizierter Bornscher Näherung“⁸ und für unendlich schweren Targetkern gegeben durch

$$\begin{aligned} U_{d,p}^{\text{Stripping}} &= \text{constans} \cdot \int_{r_p > R_0} \psi_p^{* m_p} \chi_i^{* m_i} I_{np} \psi_d^{m_d} \chi_i^{m_i} d\tau_p d\tau_n d\tau_i \Bigg\} \\ &= \text{constans} \cdot I^{m_p m_i m_d m_i} \end{aligned} \quad (2)$$

Dabei sind $\chi_i^{m_i}$ und $\chi_i^{m_i}$ die Wellenfunktionen des Anfangs- und Endkerns mit den magnetischen Quantenzahlen m_i und m_i , I_{np} die Neutron-Proton-Wechselwirkung im Deuteron, p, n bezeichnen die Koordinaten von Proton und Neutron und i die inneren Koordinaten des Targetkerns. m_p und m_d sind die magnetischen Quantenzahlen von Proton und Deuteron, und $\psi_p^{m_p}$ und $\psi_d^{m_d}$ haben die Form⁹

$$\begin{aligned} \psi_d^{m_d} &= e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d (\vec{r}_p + \vec{r}_n)} \chi_d^{m_d} + \left\{ \begin{array}{l} \text{auslaufende elastische Streuwellen von} \\ \text{Deuteronen} \end{array} \right\} \\ &= e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d (\vec{r}_p + \vec{r}_n)} \chi_d^{m_d} + \varphi_d^{m_d} \\ \psi_p^{m_p} &= e^{i \vec{k}_p \vec{r}_p} \chi_p^{m_p} + \left\{ \begin{array}{l} \text{einlaufende elastische Streuwellen von} \\ \text{Protonen} \end{array} \right\} \\ &= e^{i \vec{k}_p \vec{r}_p} \chi_p^{m_p} + \varphi_p^{m_p} \end{aligned} \quad (3)$$

Hier sind \vec{k}_d und \vec{k}_p die Impulsvektoren von Deuteron und Proton, $\chi_d^{m_d}$ die innere Wellenfunktion des Deuterons, $\chi_p^{m_p}$ die Spinfunktion des Protons. Zur Berechnung der Polarisation beschränken wir uns auf $U_{d,p}^{\text{Stripping}}$, denn dieses Matrixelement gibt für Winkel $\vartheta \leq 40^\circ$ den differentiellen Wirkungsquerschnitt der Reaktion richtig wieder. Diese Vereinfachung ist allerdings sicher nur für solche Deuteronenenergien zutreffend, welche von der Resonanzenergie des Compoundkerns stark verschieden sind. Dann ist der Polarisationsvektor \vec{P} der freigesetzten Protonen für unpolarisierte Deuteronen und unpolarisierte Targets nach Definition¹⁰ gegeben durch

$$\begin{aligned} \vec{P} &= \frac{\sum_{m_p m'_p m_i m_d m_i} I^{m_p m_i m_d m_i} I^{* m'_p m_i m_d m_i} \langle \chi_p^{m'_p} | \vec{\sigma}_p | \chi_p^{m_p} \rangle}{\sum_{m_p m_i m_d m_i} |I^{m_p m_i m_d m_i}|^2} \Bigg\} \\ &= P \cdot \frac{\vec{k}_p \times \vec{k}_d}{|\vec{k}_p \times \vec{k}_d|} \end{aligned} \quad (4)$$

⁸ TOBOCMAN, W.: Phys. Rev. **94**, 1655 (1954) und Technical Report of the Nuclear Physics Laboratory, Case Institute of Technology 1956 (unveröff.).

⁹ Vgl. THOMAS, R. G., Fußnote 5 auf S. 390 und TOBOCMAN, W., Fußnote 8.

¹⁰ SIMON, A., u. T. A. WELTON: Phys. Rev. **90**, 1036 (1953).

Zur Berechnung von \vec{P} benutzen wir die Methode der Dichtematrizen¹¹, die es uns ermöglicht, die Einflüsse der elastischen Proton- und Deuteronstreuung, der Abweichungen des eingefangenen Nukleons von reiner $j-j$ -Kopplung, der Tensorkraft beim Deuteron usw. auf Winkelverteilung und Polarisierung ohne Mühe zu untersuchen. Zu diesem Zweck werden wir \vec{P} in der Form schreiben

$$\vec{P} = \frac{S p \{ \vec{\sigma}_p 0 \}}{S p \{ 0 \}}_{n, p} \quad (5)$$

$S p$ heißt hier Spurbildung bezüglich Neutronen- und Protonenspin-
 n, p
koordinaten.

§ 2. Abweichungen von reiner $j-j$ -Kopplung für das eingefangene Nukleon

Sowohl im Zähler wie im Nenner von \vec{P} in (4) wird das Produkt $I_{m_p m_f m_d m_i} I^*_{m_p m_f m_d m_i}$ über m_f und m_i summiert. Schreibt man $I_{m_p m_f m_d m_i}$ nach (2) aus, so kann man die Summe über m_f und m_i sowie die Integration über die Targetkoordinaten unabhängig von den anderen Operationen ausführen. Man erhält dann folgenden Ausdruck:

$$\left. \begin{aligned} F(r_N, r'_N, \xi_N, \xi'_N) &= \sum_{m_f m_i} \times \\ &\times \left(\left[\int d\tau_i \chi_i^* \chi_f(r_N, r_i, \xi_N, \xi_i) \chi_i^{m_i}(r_i, \xi_i) \right] \cdot [\text{konj. kompl.}] \right) \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

Dabei sind r_i, ξ_i Orts- und Spinkoordinaten des Targets Kerns, r_N, ξ_N die des Neutrons, und χ_i und χ_f sind antisymmetrisch in Neutronen bzw. Protonen. Bezüglich der Spinkoordinaten ξ_i ist in (6) das Skalarprodukt zu nehmen.

F ist die Dichtematrix für das eingefangene Teilchen. Wir nehmen an, daß für dieses Teilchen ein Schalenmodell gilt und es mit festem Bahndrehimpuls l gebunden wird. Diese Annahme gilt sicher für alle Kerne, die leichter als O^{16} sind, weil aus Paritätsgründen hier zu den p -Zuständen höchstens f -Zustände zugemischt werden können, deren Niveaus aber schon sehr hoch liegen.

Unter dieser Annahme beweisen wir im Anhang 1: F läßt sich (als Matrix im Spinraum des Neutrons geschrieben) in der Form

$$F = g_r^*(r_n) g_e(r'_n) \left(a Y_e^0(r_n^0 r_n^{0'}) + b (\vec{\sigma}_n \vec{L}_n) Y_e^0(r_n^0 r_n^{0'}) \right) \quad (7)$$

¹¹ STECH, B.: Theorie der Dichtematrizen (unveröff.). — KRETZSCHMAR, M.: Z. Physik **144**, 168 (1956).

darstellen. Dabei sind: $g_c(r_n)$ die normierte Radialfunktion des Neutrons, Y_l^0 die Kugelfunktion mit Index l , die vom Skalarprodukt der beiden Einsvektoren r_0, r'_0 abhängt, $\hat{\sigma}_n$ sein Spinvektor, $r_n = r_n r_n^0$, $r_n^{0,2} = 1$, $\vec{L}_n = \frac{1}{i} [r_n \times F_n]$. a und b sind reelle Zahlen, die von der Art der Kopplung abhängen. Wird das Neutron in eine noch nicht abgeschlossene Schale eingefangen [im anderen Fall ist die Berechnung von (6) trivial], so ist

$$\left. \begin{aligned} \text{für } L-S\text{-Kopplung: } a &= \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} |\langle p^n, [f] L_f S_f T_f | p^{n-1} [f'] L_i S_i T_i \rangle|^2, \\ b &= 0 \\ \text{für } j-j\text{-Kopplung: } a &= \frac{j+\frac{1}{2}}{4\pi(2l+1)} |\langle j^{n-1}, J_i, \alpha_i, j | j^n, J_f, \alpha_f \rangle|^2; \\ b &= \frac{(-)^{j-l+\frac{1}{2}}}{j+\frac{1}{2}}. \end{aligned} \right\} \quad (7a)$$

Dabei sind $\langle p^n, [f] L_f S_f T_f | p^{n-1}, [f'] L_i S_i T_i \rangle$ und $\langle j^{n-1}, J_i, \alpha_i, j | j^n, J_f, \alpha_f \rangle$ die coefficients of fractional parentage für $L-S$ - und $j-j$ -Kopplung, wie sie bei JAHN und VAN WIERINGEN und bei EDMONDS und FLOWERS¹² definiert werden, mit den dort angegebenen Bezeichnungen.

§ 3. Die Tensorkraft beim Deuteron.

Endliche Reichweite des Neutron-Proton-Potentials

In diesem Abschnitt diskutieren wir zweierlei: den Einfluß des D -Zustandes des Deuterons und den Einfluß der endlichen Reichweite des Neutron-Proton-Potentials auf die Polarisation.

Um den Einfluß der Tensorkraft abzuschätzen, nehmen wir in $I_{m_p m_f m_d m_i}$ zunächst nur die Bornsche Näherung, vernachlässigen also die Streuwellen. Das ist konsequent im Sinne einer Störungsrechnung. Der D -Zustand ist nur zu 4% zum S -Zustand beigemischt. Die Streuwellen stellen für den Wirkungsquerschnitt ebenfalls eine Korrektur dar, man vernachlässigt also Interferenzglieder. Entsprechend nimmt man für die Polarisation, die in Bornscher Näherung verschwindet, die nächste Näherung, vernachlässigt also auch hier die Interferenzterme zwischen Streuwellen und D -Zustand des Deuterons.

Die Rechnung gibt Anhang 2 wieder. Danach ist der Einfluß der Tensorkraft vernachlässigbar gegen den Effekt der endlichen Reichweite: Für den Wirkungsquerschnitt ist schon bekannt¹³, daß die Tensor-

¹² JAHN, H. A., u. H. VAN WIERINGEN: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **209**, 502 (1951). — EDMONDS, A. R., u. B. H. FLOWERS: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **212**, 248 (1952).

¹³ THOMAS, R. G.: Siehe Fußnote 5 und DALITZ, R. H.: Proc. Phys. Soc. Lond., A **65**, 175 (1952).

kraft in Bornscher Näherung keine Rolle spielt, denn hier gibt es keine Interferenzterme zwischen Gliedern, die vom S - und solchen, die vom D -Zustand herrühren.

Die Polarisation besteht aus zwei Anteilen, deren einer nur vom S -Zustand und von der endlichen Reichweite des Potentials herrührt, während der andere vom D -Zustand kommt und mindestens um einen Faktor 3 kleiner ist als der erste.

Es ist noch wichtig zu bemerken, daß beide Anteile nur deshalb von Null verschieden sind, weil für die Integrationsvariable r_p die Einschränkung $r_p > R_0$ besteht. Für $R_0 = 0$ wird die Polarisation in Bornscher Näherung identisch Null.

Damit können wir von der Tensorkraft absehen und uns auf die Diskussion der endlichen Reichweite beschränken. Nach Anhang 2 erhält man für $\text{Sp} \{0\}$ und $\text{Sp} \{\vec{\sigma}_p 0\}$ folgende Ausdrücke:

$$\text{Sp}_{n,p} \{0\} = \left\{ 3a \cdot \int_{r_p, r_p' > R_0} d\tau_p d\tau_p' d\tau_n d\tau_n' e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d(\tau_p + \tau_n - \tau_p' - \tau_n') - i \vec{k}_p(\tau_p - \tau_p')} \times \right. \\ \left. \times g_e(r_n') g_e(r_n) Y_e^0(\tau_n^0 \tau_n'^0) \times \right. \\ \left. \times (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\tau_p - \tau_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\tau_p' - \tau_n'|), \right\} \quad (8)$$

$$\text{Sp}_{n,p} \{\vec{\sigma}_p 0\} = \left\{ b \cdot \int_{r_p, r_p' > R_0} d\tau_p d\tau_p' d\tau_n d\tau_n' e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d(\tau_p + \tau_n - \tau_p' - \tau_n') - i \vec{k}_p(\tau_p - \tau_p')} \times \right. \\ \left. \times g_e(r_n') g_e(r_n) \times \right. \\ \left. \times \vec{L}_e Y_e^0(\tau_n^0 \tau_n'^0) (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\tau_p - \tau_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\tau_p' - \tau_n'|). \right\} \quad (9)$$

Für die im folgenden eingeführte Vernachlässigung der endlichen Reichweite sprechen folgende Gründe: In der Formel für $\text{Sp} \{0\}$ führt die ursprüngliche Butlersche Ableitung auf die Integrationsgrenzen $0 \leq r_p \leq \infty$, $r_n > R_0$. Hier kann man durch Ausrechnen direkt vergleichen, welchen Fehler man durch Vernachlässigung der endlichen Reichweite macht, denn das Integral zerfällt in 2 Faktoren, die sich berechnen lassen. Er beträgt im differentiellen Wirkungsquerschnitt für alle Winkel weniger als 5%. Entsprechendes sollte für unser genau so gebautes, aber mit komplizierteren Grenzen versehenes Integral (8) gelten.

Überträgt man diese Erfahrung auf (9), so schätzt man sofort ab, daß die aus (8) und (9) berechnete Polarisation $|P| \leq \frac{1}{3} \cdot 5\%$ sein sollte. Das erhellt auch aus den stark eingeschränkten Integrationsgrenzen in (9) (s. Anhang 2). Darum werden im folgenden Tensorkraft und endliche Reichweite des Neutron-Proton-Potentials vernachlässigt.

§ 4. Formeln für die Polarisation

Um die Polarisation wirklich auszurechnen, müssen wir noch einen analytischen Ausdruck für die Streuwellen hinschreiben. Für die weitere Rechnung ist es dabei zweckmäßig, die nach (3) auftretenden ebenen Wellen nicht nach Kugelwellen zu zerlegen, sondern dieses Verfahren nur auf die Streuwellen anzuwenden. Man bekommt dann nämlich Formeln, die sich durch Streichen der Streuwellen direkt mit der Bornschen Näherung vergleichen lassen.

Dazu nehmen wir an, daß die elastische Streuung der Protonen am Endkern so erfolgt, daß die Eigenwerte L, J, J^Z von $\vec{L}_p^2, \vec{J}_p^2 = (\vec{L}_p + \frac{1}{2}\vec{\sigma}_p)^2$ und J_p^Z bei der Streuung gute Quantenzahlen sind, d.h. daß die Streuung vollständig durch einen von den beiden Quantenzahlen L und J als Indexmenge abhängigen Satz von Zahlen β_{Lj} beschrieben wird, die mit den bei BLATT und WEISSKOPF¹⁴ definierten Größen η_{Lj} über die Beziehung $\beta_{Lj} = -\frac{1}{2}(1 - \eta_{Lj})$ zusammenhängen. Wegen der in (3) enthaltenen Randbedingung ist dann φ_p^{mp} gegeben durch

$$\left. \begin{aligned} \varphi_p^{mp}(\vec{k}_p, \vec{r}_p) = \sum_{L,J} \left\{ \sqrt{4\pi(2L+1)} i^L \beta_{LJ}^* h_L^{(2)} \times \right. \\ \left. \times (k_p r_p) \frac{J + \frac{1}{2} + (-)^{J-L-\frac{1}{2}} (\vec{\sigma} \cdot \vec{L}_p)}{2L+1} Y_L^0(\vec{k}_p^0, \vec{r}_p^0) \chi_p^{mp} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Die $h_L^{(2)}$ sind die 2. sphärischen Hankel-Funktionen mit Index L . Der Faktor vor Y_L^0 ist ein Projektionsoperator in die Zustände $J = L \pm \frac{1}{2}$.

Für die spätere Diskussion ist es zweckmäßig, φ_p^{mp} in der Form

$$\left. \begin{aligned} \varphi_p^{mp} = \sum_L \left\{ \sqrt{4\pi(2L+1)} i^L (L \beta_{L,L-\frac{1}{2}}^* + (L+1) \beta_{L,L+\frac{1}{2}}^*) \times \right. \\ \times h_L^{(2)}(k_p r_p) \frac{Y_L^0(k_p^0, r_p^0)}{2L+1} \chi_p^{mp} + \\ \left. + \sum_L \sqrt{4\pi(2L+1)} i^L (\beta_{L,L+\frac{1}{2}}^* - \beta_{L,L-\frac{1}{2}}^*) \times \right. \\ \left. \times (\vec{\sigma}_p \cdot \vec{L}_p) \frac{Y_L^0(k_p^0, r_p^0)}{2L+1} \chi_p^{mp} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (10a)$$

zu schreiben. Der zweite Teil verschwindet, wenn \vec{L}_p^Z und $\vec{\sigma}_p^Z$ gute Quantenzahlen sind, also keine Spinbahnkopplung bei der Streuung vorliegt. Dieser Teil beschreibt also direkt den Einfluß der Spinbahnkopplung auf die Streuwelle. Der erste Teil ist im wesentlichen unabhängig von der Spinbahnkopplung und gibt den Einfluß der reinen elastischen Streuung auf die Streuwelle wieder.

¹⁴ BLATT, J.M., u. V.F. WEISSKOPF: Theoretical Nuclear Physics, S. 320. New York: John Wiley & Sons 1952.

Für die Deuteronstreuung nehmen wir an, daß die Eigenwerte von $\vec{L}_d^2, \vec{L}_d^Z, \vec{S}^2 = \frac{1}{4} (\vec{\sigma}_p + \vec{\sigma}_n)^2$ und S^Z gute Quantenzahlen sind. Wir vernachlässigen bei der Streuung also eine mögliche Spinbahnpkopplung, da über eine solche bei Deuteronstreuung bisher wenig bekannt ist, da weiterhin die Einführung eines solchen Terms erhebliche Komplikationen mit sich bringen würde und weil sich schließlich der Effekt eines Spinbahnpotentials auf die Polarisierung auch an der Protonstreuwellen studieren läßt. Die Deuteronstreuung ist also durch einen einparametrischen Satz von Größen δ_{L_d} bestimmt, und es ist

$$\left. \begin{aligned} e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n)} \chi_d^{m_d} + \varphi_d^{m_d} &= f \left(\vec{k}_d, \frac{1}{2} (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n) \right) \chi_d^{m_d} \\ &= \left(e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n)} + \varphi_d' \left(\vec{k}_d, \frac{1}{2} (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n) \right) \right) \chi_d^{m_d} \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

mit

$$\varphi_d'(\vec{k}_d, \mathbf{r}) = \sum_{L_d} \sqrt{4\pi(2L_d + 1)} i^{L_d} \delta_{L_d} h_{L_d}^{(1)}(k_d r) Y_{L_d}^0(\vec{k}_d^0 \mathbf{r}^0). \quad (11a)$$

Es ist wieder $\delta_{L_d} = -\frac{1}{2} (1 - \eta_{L_d})$, und $h_{L_d}^{(1)}$ ist die 1. sphärische Hankel-Funktion zum Index L_d .

Nach §3 machen wir für das Neutron-Proton-Potential die „zero-range-approximation“, schreiben also in $I^{m_p m_i m_d m_i}$ mit $m =$ Nukleonemasse (Bezeichnungen wie in Anhang 2):

$$V_{up} \chi_d^{m_d} = -\frac{\hbar^2}{m} \sqrt{8\pi \frac{\hbar^2}{\varepsilon \cdot m}} \delta(\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n) \chi_{\text{triplett}}^{m_d}. \quad (12)$$

Wir tragen (7), (A II.2), (10), (11) und (12) in (4) ein und berechnen \vec{P} nach (5). Es ergibt sich, wenn man nach den Phasen der Protonstreuung ordnet:

$$\left. \begin{aligned} S_{n,p} \{0\} &= \left[3a G_e^{(1)} + 3a(4\pi)^2 \sum_{J,L,J',L'} i^{L'-L} \frac{(J+\frac{1}{2})(J'+\frac{1}{2})}{\sqrt{(4\pi)^2(2L+1)(2L'+1)}} \times \right. \\ &\quad \times \beta_{LJ} \beta_{L'J'}^* G_{LeL'}^{(5)} + 2 \Re \left\{ 3a \cdot 4\pi \sum_{J,L} i^{-L} \frac{J+\frac{1}{2}}{\sqrt{(4\pi)(2L+1)}} \beta_{LJ} G_{Le}^{(2)} + \right. \\ &\quad + b \cdot 4\pi \sum_{J,L} i^{-L} \frac{(-)^{J-L+\frac{1}{2}}}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \beta_{LJ} G_{Le}^{(3)} + \\ &\quad + b \cdot (4\pi)^2 \sum_{JLJ'L'} i^{L'-L} \frac{(J'+\frac{1}{2})(-)^{J-L+\frac{1}{2}}}{\sqrt{(4\pi)^2(2L+1)(2L'+1)}} \beta_{LJ} \beta_{L'J'}^* G_{LeL'}^{(4)} \Big\} + \\ &\quad \left. + 3a \cdot (4\pi)^2 \sum_{JLJ'L'} i^{L'-L} \frac{(-)^{J+J'-L-L'}}{\sqrt{(4\pi)^2(2L+1)(2L'+1)}} \beta_{L'J'}^* \beta_{LJ} G_{LeL'}^{(6)} \right]. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

$$\begin{aligned}
S_{n,p} \{ \vec{\sigma}_p \} = & \frac{\vec{k}_p \times \vec{k}_d}{k_p \times k_d} 2 \operatorname{Re} \left\{ 4a \cdot 3 \cdot 4\pi \sum_{J,L} i^{-L} \beta_{LJ} \frac{(-)^{J-L+\frac{1}{2}}}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \times \right. \\
& \times \left[H_{Le}^{(1)} + \sum_{J',L'} 4\pi i^{L'} \frac{J'+\frac{1}{2}}{\sqrt{4\pi(2L'+1)}} \beta_{L'J'}^* H_{Le}^{(2)} \right] + \\
& + 4b \cdot 4\pi \sum_{J',L'} i^{L'} \frac{(-)^{J'-L'-\frac{1}{2}}}{\sqrt{4\pi(2L'+1)}} \beta_{L'J'}^* \times \\
& \times \left[H_{eL'}^{(3)} + \sum_{J,L} 4\pi i^{-L} \frac{J+\frac{1}{2}}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \beta_{LJ} H_{LeL'}^{(4)} \right] + 4b \cdot 4\pi \sum_{J',L'} i^{L'} \times \\
& \times \frac{J'+\frac{1}{2}}{\sqrt{4\pi(2L'+1)}} \beta_{L'J'}^* \left[H_{eL'}^{(5)} + \frac{1}{2} \cdot 4\pi \sum_{J,L} i^{-L} \frac{J+\frac{1}{2}}{\sqrt{4\pi(2L+1)}} \beta_{LJ} H_{LeL'}^{(6)} \right] + \\
& + 4b \cdot H_e^{(7)} + 4 \cdot (4\pi)^2 \sum_{J,J',L'} i^{L'-L} \frac{(-)^{J+J'-L-L'}}{\sqrt{(4\pi)^2(2L+1)(2L'+1)}} \beta_{LJ} \beta_{L'J'}^* \times \\
& \times \left. \left[3a H_{LeL'}^{(8)} + b H_{LeL'}^{(9)} + \frac{1}{2} b \cdot H_{LeL'}^{(10)} \right] \right\}. \quad (14)
\end{aligned}$$

Die $G^{(i)}$ und $H^{(i)}$ sind Ausdrücke, die noch vom Winkel zwischen \vec{k}_p und \vec{k}_d^0 abhängen und im Anhang 3 definiert sind.

Damit haben wir für den Wirkungsquerschnitt $\sigma(\vartheta)$, der zu $\operatorname{Sp} \{0\}_{n,p}$ proportional ist, und für $\vec{P}(\vartheta)$ Ausdrücke gewonnen, die von folgenden Parametern abhängen: a und b (sie beschreiben die Art der Kopplung des eingefangenen Teilchens), den Streuphasen für Deuteronen und Protonen, dem Strippingradius R_0 .

Der Vorteil des eingeschlagenen Verfahrens besteht einmal darin, daß \vec{P} auf eine von der Wahl des Koordinatensystems unabhängige Weise durch Spurbildung berechnet wird, zum anderen darin, daß man den in Wirkungsquerschnitt und Polarisation eingehenden Größen sofort ihren physikalischen Ursprung ansehen kann.

So ist z. B. im Ausdruck für $\operatorname{Sp} \{0\}_{n,p}$, also für den Wirkungsquerschnitt, $G_e^{(1)}$ die Bornsche Näherung, modifiziert durch die Phasen der gestreuten Deuteronen, $G_{Le}^{(2)}$ und $G_{Le}^{(3)}$ sind Interferenzterme zwischen der Bornschen Näherung und den Termen, die von der elastischen Protonstreuung herühren. Davon enthält, wie man an den Faktoren vor $G_{Le}^{(2)}$ und $G_{Le}^{(3)}$ erkennt, $G_{Le}^{(2)}$ im wesentlichen den Teil der elastischen Protonstreuung, der von einer Protonstreuung ohne Spinbahnkopplung herrührt, $G_{Le}^{(3)}$ den Teil, der den Einfluß der Spinbahnkopplung auf die elastische Protonstreuung beschreibt usw.

Die in \vec{L}_p linearen $H^{(i)}$ und damit die Polarisation können, wie man ebenfalls sofort abliest, folgenden Ursprung haben (in Bornscher Näherung ist bekanntlich die Polarisation trivialerweise Null):

1. $j-j$ -Kopplung für das eingefangene Teilchen (oder wesentlich von $L-S$ -Kopplung verschiedene Kopplung, da sonst ja $b=0$ ist) und elastische Deuteronstreuung (Term $H^{(7)}$).

2. $j-j$ -Kopplung für das eingefangene Teilchen und elastische Streuung der Protonen im wesentlichen ohne Spinbahnkopplung (Term $H^{(5)}$).

3. Streuung der Protonen mit Spinbahnkopplung (Term $H^{(1)}$).

Die übrigen Terme sind Interferenzterme zwischen diesen Effekten oder quadratisch in diesen. Man kann die angegebenen Formeln mit den von HOROWITZ und MESSIAH und CHESTON berechneten vergleichen. Im ersten Fall hat man $\delta_L = 0$ und $\beta_{L, L+\frac{1}{2}} = \beta_{L, L-\frac{1}{2}}$ zu setzen und erhält nach trivialen Umformungen das Resultat von HOROWITZ und MESSIAH.

Beim Vergleich mit der Arbeit von CHESTON zeigt sich, daß neben den von SAWICKI angeführten Irrtümern CHESTON es versäumt hat, die richtigen Randbedingungen für die Protonen zu fordern [vgl. Formel (8) bei CHESTON]. Da die Randbedingungen aber sehr wesentlich eingehen (vgl. Punkt 3 des §6), erlaubt CHESTONS Rechnung keine Rückschlüsse auf den wirklichen Zusammenhang zwischen Streuphasen und Polarisierung.

§ 5. Numerisches

Die angegebenen Formeln wurden benutzt, um unter Einschluß der Korrektur für endliche Masse des Targetkerns die Polarisierung bei der Reaktion $C^{12}(d, p)C^{13}$ mit 11,9 MeV Energie der Deuteronen im Laborsystem zu berechnen. Da nur eine elektrische Tischrechenmaschine zur Verfügung stand, wurden auch in den numerischen Rechnungen Coulomb-Korrekturen nicht berücksichtigt¹⁵.

Die verfügbaren Parameter wurden wie folgt festgelegt:

1. Wahl des Strippingradius: $R_0 = 4,5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ ¹⁶

2. Wahl der Phasen für die elastische Protonstreuung. Natürlich sollte man hier eigentlich experimentelle Phasen einsetzen, ebenso bei der Deuteronstreuung, um alle Unverträglichkeiten beim Vergleich mit Experimenten auf die theoretische Beschreibung des Prozesses und nicht auf genäherte Potentiale zurückführen zu können. Das ist leider zur Zeit noch nicht möglich. Deshalb wurden die Streuphasen aus Potentialen berechnet, die die Winkelverteilung bei der Streuung gut wieder-

¹⁵ Sie sollten bei den betrachteten Energien keine wesentliche Rolle mehr spielen. Die Polarisierung durch reine Coulomb-Effekte bei niedriger Energie wurde mit zwei verschiedenen Annahmen von J. Yoccoz [Proc. Phys. Soc. Lond. A **67**, 813 (1954)], und I. P. GRANT [Proc. Phys. Soc. Lond. A **68**, 244 (1954)] untersucht.

¹⁶ Diese Wahl ist mit den beiden Messungen der Winkelverteilung der Protonen von T. S. GREEN u. R. MIDDLETON [Proc. Phys. Soc. Lond. A **69**, 28 (1956)], bei 9 MeV und von I. N. MCGRUE, E. K. WARBURTON u. S. R. BENDER [Phys. Rev. **100**, 235 (1955)] bei 14,8 MeV verträglich.

geben. Für die in Frage kommende Energie scheint das optische Modell am zweckmäßigsten¹⁷. Zur Bestimmung der $\beta_{L,v}$ wurde ein Kastenpotential mit Radius $R_v = 3,4 \cdot 10^{-13}$ cm zugrundegelegt, das die Form hat

$$V = V_1 + iV_2 + (\vec{\sigma}_p \vec{L}_p) V_3 \quad \text{mit} \quad \left. \begin{array}{l} V_1 = -30 \text{ MeV}, \quad V_2 = -5 \text{ MeV}, \\ V_3 = -2 \text{ MeV}. \end{array} \right\} \quad (15)$$

3. Wahl der Phasen für die elastische Deuteronstreuung. Da es im fraglichen Energiegebiet keine experimentellen Daten gibt, wurden verschiedene Annahmen gemacht:

a) Es gilt die Randbedingung von FESHBACH¹⁸: Danach ist die logarithmische Ableitung am Kernrand $R = 4,0 \cdot 10^{-13}$ gegeben durch

$$f_{L_d} = -iKR \quad \text{mit} \quad K = 1,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-1}.$$

b) Die Deuteronen mit Drehimpuls $L_d \leq 3$ werden vollkommen absorbiert: $\delta_{L_d} = -\frac{1}{2}$.

c) Die Deuteronen werden an einer harten Kugel mit Radius $R = 5,0 \cdot 10^{-13}$ cm gestreut.

4. Für Protonen und für Deuteronen wurden die Phasen mit $l > 3$ vernachlässigt, und für das eingefangene Teilchen wurde reine $j-j$ -Kopplung, d.h. $b = (-)^{j-l+\frac{1}{2}}$ angenommen.

Unter diesen Annahmen wurde zunächst $\text{Sp} \{ \vec{\sigma}_p 0 \}$ berechnet. Tabelle 1 zeigt die Ergebnisse. Dabei ist $\text{Sp} \{ \vec{\sigma}_p 0 \}$ geschrieben in der Form

$$\text{Sp} \{ \vec{\sigma}_p 0 \} = \frac{\vec{k}_p \times \vec{k}_d}{|\vec{k}_p \times \vec{k}_d|} \cdot W(\vartheta) \quad (16)$$

und W ist in willkürlichen Einheiten eingetragen für die Fälle

- α) keine Protonstreuung, Deuteronstreuung nach Annahme a),
- β) keine Protonstreuung, Deuteronstreuung nach Annahme b),
- γ) keine Protonstreuung, Deuteronstreuung nach Annahme c),
- δ) Protonstreuung nach (15), keine Deuteronstreuung, Term im wesentlichen ohne Spinbahnkopplung ($H^{(5)}$),
- ϵ) Protonstreuung nach (15), keine Deuteronstreuung, Spinbahnkopplungsterm ($H^{(1)}$),
- ζ) Protonstreuung nach (15) ohne Spinbahnkopplung, Deuteronstreuung nach a) (Terme $H^{(5)}$, $H^{(6)}$, $H^{(7)}$).

¹⁷ Vgl. hierzu: CHASE, D.M., u. F. ROHRICH: Phys. Rev. **94**, 81 (1954). — WOODS, R.D., u. D.S. SAXON: Phys. Rev. **95**, 577 (1954). — CARVALHO, H.G. DE, J. MARSHALL u. L. MARSHALL: Phys. Rev. **96**, 1081 (1954). — STERNHEIMER, R.M.: Phys. Rev. **100**, 886 (1956). — STRAUCH, K.: Phys. Rev. **99**, 150 (1955).

¹⁸ BLATT, J.M., u. V.F. WEISSKOPF: loc. cit. p. 351.

Tabelle 1

$\vartheta(^{\circ})$ (CMS)	W_{α}	W_{β}	W_{γ}	W_{δ}	W_{ϵ}	W_{ζ}
0°	0	0	0	0	0	0
10°	+ 7,6346	+ 7,0593	+ 7,4449	- 5,8943	- 0,1198	+ 1,0803
20°	+ 8,9666	+ 8,2680	+ 9,0794	- 7,5378	- 0,1965	+ 0,1452
40°	+ 2,0908	+ 1,8551	+ 1,0860	- 2,5831	+ 0,1463	- 1,4674
60°	- 0,0337	+ 0,0041	+ 0,1073	+ 0,1657	- 0,0978	+ 0,3177
80°	+ 0,1142	+ 0,2993	+ 0,1957	- 0,1370	- 0,1542	+ 0,0970
100°	- 0,0072	+ 0,0859	+ 0,1018	- 0,2152	+ 0,1782	- 0,3087

§ 6. Diskussion, Vergleich mit dem Experiment

1. *Abhängigkeit vom Streupotential.* Ein Vergleich von W_{α} , W_{β} und W_{γ} zeigt, daß W fast unabhängig von der Art des angenommenen Potentials ist. Entsprechendes gilt natürlich für die Protonen. Das liegt daran, daß wir es bei unseren Annahmen mit einem Sprung des Potentials am Kernrand und damit einen Sprung in den Wellenzahlen zu tun haben. Dieser Sprung impliziert eine starke hard-sphere-scattering, die den Einfluß des individuellen Potentials stark überdeckt. Eine Änderung dieses Sachverhalts könnte sich erst beim Übergang zu diffusem Potential ergeben*.

2. *$j-j$ -Kopplung für das eingefangene Teilchen, Spinbahnkopplung für die gestreuten Teilchen.* Wenn Proton- bzw. Deutronstreuung durch ein Potential der Form (15), in dem das Spinbahnkopplungspotential etwa einen Faktor 10 kleiner ist als das Potential für die elastische Streuung ohne Spinbahnkopplung, richtig beschrieben werden können, dann ist die wesentliche Ursache für die Polarisation die $j-j$ -Kopplung des eingefangenen Teilchens.

Das liegt an folgendem: Alle Integrale, die von der Spinbahnkopplung der Protonstreuung herrühren, sind nach (11a) mit dem Faktor $(\beta_{L,L+\frac{1}{2}} - \beta_{L,L-\frac{1}{2}})$ multipliziert, alle anderen Integrale mit dem Faktor $(L\beta_{L,L-\frac{1}{2}} + (L+1)\beta_{L,L+\frac{1}{2}})$. Das Verhältnis beider Faktoren ist für $L \leq 3$ kleiner als $\frac{1}{10}$, für $L = 0,1$ noch wesentlich kleiner. Die Integrale selbst sind, wie man nachrechnen kann, für Winkel $\vartheta \leq 40^{\circ}$ von gleicher Größenordnung.

Das wird falsch, wenn entweder für festes L und J eine Resonanz der elastischen Streuung vorliegt (allerdings erkennt man aus Tabelle 1, daß ein Faktor 20 notwendig ist, um die Beiträge mit denen von der $j-j$ -Kopplung vergleichbar zu machen), oder wenn die Kopplung des eingefangenen Teilchens sehr stark von $j-j$ -Kopplung abweicht. Dann ist b sehr klein, und alle Terme, die nicht vom Spinbahnkopplungspotential der elastischen Streuung herrühren, sind linear in b .

* Ein solches Potential gibt auch die Proton-Kernstreuung besser wieder; siehe die unter Fußnote 17 zitierten Arbeiten.

Für Winkel $\vartheta \geq 40^\circ$ werden alle Beiträge so klein, daß keine Aussagen mehr möglich sind.

3. *Vorzeichen der Polarisation.* Nach dem unter 2. ausgeführten ist die Polarisation linear in b , also in $(-)^{l-\frac{1}{2}}$. Ihr Vorzeichen ergibt also direkt eine Aussage über den Gesamtspin des eingefangenen Nukleons*.

Die von der Protonstreuung herrührenden Terme in der Polarisation bringen für Winkel $\vartheta \leq 40^\circ$ umgekehrte Vorzeichen wie die von der Deuteronstreuung herrührenden. Insgesamt dominiert aber die Deuteronstreuung. Das liegt an den verschiedenen Randbedingungen, denen Protonen und Deuteronen unterworfen sind. In Anbetracht der oben diskutierten Unabhängigkeit unserer Ergebnisse von der Wahl des Potentials können wir schließen: $\text{sign } P = \pm 1$, je nachdem $j = l \mp \frac{1}{2}$ (für kleine Streuwinkel).

4. *Absolute Größe der Polarisation. Vergleich mit dem Experiment.* Unter Vernachlässigung der Spinbahnkopplung für die gestreuten Teilchen ist die theoretisch zu erwartende Polarisation stets kleiner als 33%¹⁹.

Vergleicht man W_z mit W_x , W_y oder W_v , so stellt man fest, daß die Protonstreuung den Betrag von W stark reduziert. Dasselbe gilt nach den numerischen Rechnungen von TOBOCMAN und KALOS²⁰ für den Wirkungsquerschnitt.

Man erwartet daher, daß man eine vernünftige Aussage erhält, wenn man \vec{P} für reine $j-j$ -Kopplung aus den Phasen der Deuteronstreuung allein berechnet und die Protonstreuung vernachlässigt. Wegen des Umfangs der sonst notwendigen numerischen Rechnungen wurde dieser Weg eingeschlagen. Die Ergebnisse nach Annahme b) zeigt Fig. 1, zum Vergleich ist die Messung von JUVELAND und JENTSCHKE eingetragen.

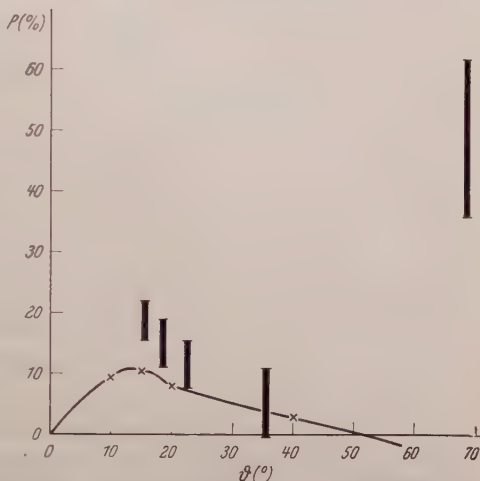


Fig. 1. Berechnete Polarisation aus der elastischen Deuteronstreuung (x) nach Annahme b (s. S. 399). Zum Vergleich dazu das Experiment von JUVELAND und JENTSCHKE (I)

* Das wurde von HOROWITZ und MESSIAH (s. Fußnote 3 auf S. 389) schon für reine Protonstreuung an einer harten Kugel bewiesen. Jedoch ergab sich dabei wegen der Vernachlässigung der Deuteronphasen für die Polarisation ein falsches Vorzeichen.

¹⁹ Vgl. HOROWITZ, J., u. A.M.L. MESSIAH, Fußnote 3.

²⁰ TOBOCMAN, W., u. M.H. KALOS: Phys. Rev. **97**, 132 (1955).

Man sieht, daß der Verlauf für $\vartheta \leq 40^\circ$ richtig wiedergegeben wird, daß aber alle Werte um einen Faktor 1,5 bis 2 zu klein sind.

Der experimentelle Wert bei $68,5^\circ$ ist so hoch ($49 \pm 13\%$), daß man ihn durch reine Strippingtheorie wohl kaum dürfte erklären können. Ebenso ist verwunderlich, daß Polarisationsmessungen bei gleicher Energie an den Reaktionen $C^{12}(d, p)C^{13}\star$ und $Si^{28}(d, p)Si^{29}$ zu kleinerer Polarisation führen. Es erscheint daher denkbar, daß man zum Verständnis der Daten bei der Reaktion $C^{12}(d, p)C^{13}$ Compoundkerneffekte in Betracht ziehen muß^{*}. Dazu wäre es wünschenswert, den Winkelverlauf des Wirkungsquerschnittes bei 11,9 MeV Deuteronenergie experimentell zu bestimmen, um den Anteil der Compoundkernbildung an der (d, p) -Reaktion abzuschätzen.

Es zeigt sich, daß für kleine Streuwinkel die Polarisation positiv oder negativ ist, wenn Spin $\frac{1}{2}$ und Bahndrehimpuls l des eingefangenen Nukleons sich zu $j = l - \frac{1}{2}$ bzw. $j = l + \frac{1}{2}$ zusammen koppeln. Ein quantitatives Verständnis der Polarisation erfordert aber weitere Untersuchungen, einerseits in Form von Experimenten über die Phasen bei elastischer Deuteron- und Protonstreuung (Deuteronstreuung am Targetkern, Protonstreuung am Endkern), andererseits in Form von numerischen Rechnungen über den Einfluß dieser Phasen auf die Polarisation.

Herrn Professor Dr. J. H. D. JENSEN danke ich sehr herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit und wertvolle Diskussionen. Herrn Professor Dr. W. JENTSCHKE danke ich für Überlassung von Meßergebnissen vor der Veröffentlichung. Der Studienstiftung des deutschen Volkes und dem Kultusministerium des Landes Baden-Württemberg habe ich für ihre finanzielle Unterstützung zu danken.

Anhang 1. Beweis der Formel für F

Der Ausdruck

$$P_j = \sum_{m_j} \chi_j^{m_j}(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_A, \zeta_n, \zeta_1, \dots, \zeta_A) \chi_j^{*m_j}(\mathbf{r}'_n, \mathbf{r}'_1, \dots, \mathbf{r}'_A, \zeta'_n, \zeta'_1, \dots, \zeta'_A) \quad (\text{A I.1})$$

ist invariant gegenüber simultanen Drehungen bezüglich sämtlicher $A+1$ -Teilchen: P_j ist ein Projektionsoperator, der in einen irreduziblen Teilraum des $(A+1)$ -fachen Kronecker-Produktes der Drehgruppe projiziert. Entsprechendes gilt für

$$P_i = \sum_{m_i} \chi_i^{m_i}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_A, \zeta_1, \dots, \zeta_A) \chi_i^{*m_i}(\mathbf{r}'_1, \dots, \mathbf{r}'_A, \zeta'_1, \dots, \zeta'_A) \quad (\text{A I.2})$$

bei simultanen Drehungen bezüglich der A in P_i vorkommenden Teilchen. Das Produkt $P_i P_j^*$ ist also sicher invariant gegenüber simultanen Drehungen bezüglich sämtlicher $(A+1)$ -Teilchen. Bildet man bezüglich der Teilchen $1 \dots A$ die Spur (d.h. integriert man über $\mathbf{r}_1 = \mathbf{r}'_1, \mathbf{r}_2 = \mathbf{r}'_2, \dots, \mathbf{r}_A = \mathbf{r}'_A, \zeta_1 = \zeta'_1, \zeta_2 = \zeta'_2, \dots, \zeta_A = \zeta'_A$),

^{*} Das ist sicher notwendig bei dem Experiment von HILLMAN (Fußnote 4 auf S. 389), das bei einer Energie ausgeführt wurde, die genau einem Resonanzzustand des N^{14} entspricht.

so muß das Ergebnis trivialerweise invariant gegenüber Drehungen bezüglich des Teilchens n sein, denn eine Drehung bezüglich n können wir stets unter das Integral nehmen und dort durch Umbenennung der Integrationsvariablen als simultane Drehung bezüglich aller $(A+1)$ -Teilchen schreiben. F muß also dreihinvariant sein und die Form haben (die 1 und die Pauli-Matrizen bilden im Spinraum des Teilchens n ein vollständiges System):

$$F = f(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}'_n) + (\vec{a} \cdot \vec{\sigma}_n) h(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}'_n). \quad (\text{A I.3})$$

Nach Voraussetzung gilt außerdem $\vec{L}_n^2 F = l(l+1)F$; $\vec{L}'_n^2 F = l(l+1)F$. Daraus folgt²¹

$$\left. \begin{aligned} f(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}'_n) &= g_e^*(\mathbf{r}_n) g_e(\mathbf{r}'_n) \cdot a \cdot Y_e^0(\mathbf{r}_n^0 \mathbf{r}'_n^0) \\ (\vec{a} \cdot \vec{\sigma}_n) h(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}'_n) &= g_e^*(\mathbf{r}_n) g_e(\mathbf{r}'_n) \cdot b \cdot (\vec{\sigma}_n \cdot \vec{L}_n) Y_e^0(\mathbf{r}_n^0 \mathbf{r}'_n^0) \end{aligned} \right\} \quad (\text{A I.4})$$

Dabei sind a und b Zahlen, die wegen $F(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}'_n, \zeta_n, \zeta'_n) = F^*(\mathbf{r}_n, \mathbf{r}_n, \zeta'_n, \zeta_n)$ reell sein müssen. Im Falle reiner $L-S$ - oder $j-j$ -Kopplung kann man a und b direkt berechnen und erhält die angegebenen Formeln.

Anhang 2. Zu § 3

Für den Zustand des gebundenen Deuterons schreiben wir²²

$$\chi_d^{m_d} = (u_1 + S_{12} u_2) \chi_{\text{triplett}}^{m_d} \quad (\text{A II.1})$$

mit u_1 = Radialwellenfunktion des S -Zustandes, u_2 die des D -Zustandes, $S_{12} = 3(\vec{\sigma}_p \vec{e})(\vec{\sigma}_n \vec{e}) - (\vec{\sigma}_p \vec{\sigma}_n)$ der Tensoroperator, wobei $\vec{e} = \frac{\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n}{|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|}$, $\chi_{\text{triplett}}^{m_d}$ = Spinfunktion des Tripletzustandes. Die Summe über m_d , die in Zähler und Nenner von \vec{P} nach (4) auftritt, läßt sich leicht ausführen²³:

$$\sum_{m_d} \chi_{\text{triplett}}^{m_d} \chi_{\text{triplett}}^{m_d} = \frac{1}{4} (3 + (\vec{\sigma}_p \vec{\sigma}_n)). \quad (\text{A II.2})$$

Wir gehen mit (A II.1) und (A II.2) in (4) ein und vernachlässigen, wie in § 3 ausgeführt, die Streuwellen. Unter Berücksichtigung der Identität

$$\sum_{m_p} \chi_p^{m_p} \chi_p^{m_p} = \frac{1}{3} \vec{\sigma}_p^2 \quad (\text{A II.3})$$

schreibt man (4) leicht in die Form (5) um. Berücksichtigt man die Schrödingergleichung für das Deuteron

$$(T_{\text{rel}} - \varepsilon) \chi_d^{m_d} = V_{np} \chi_d^{m_d} \quad (\text{A II.4})$$

(ε = Bindungsenergie, T_{rel} = kinetische Energie der Relativbewegung), so lassen sich die Spuren in (5) leicht ausführen und man erhält unter Vernachlässigung der

²¹ Vgl. STECH, B.: Siehe Fußnote 11 auf S. 392.

²² BLATT, J.M., u. V.F. WEISSKOPF: loc. cit., p. 99ff.

²³ KRETZSCHMAR, M.: Siehe Fußnote 11 auf S. 392.

in der Tensorkraft quadratischen Terme

$$\text{Sp} \{0\} = 3a \int_{r_p, r'_p > R_0} d\tau_p d\tau'_p d\tau_n d\tau'_n e^{\frac{i}{2} \vec{k}_d (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n - \mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n) - i \vec{k}_p (\mathbf{r}_p - \mathbf{r}'_p)} \times \left. \begin{aligned} & \times g_e(r'_n) g_e^*(r_n) Y_e^0(r_n^0 r_n'^0) (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n|), \end{aligned} \right\} \quad (\text{A II.5})$$

$$\text{Sp} \{\vec{\sigma}_p 0\} = b \cdot \int_{r_p, r'_p \geq R_0} d\tau_p d\tau'_p d\tau_n d\tau'_n g_e^*(r_n) g_e(r'_n) e^{-i \vec{k}_p (\mathbf{r}_p - \mathbf{r}'_p) + \frac{i}{2} \vec{k}_d (\mathbf{r}_p + \mathbf{r}_n - \mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n)} \times \left. \begin{aligned} & \times \left\{ \frac{1}{2} \vec{L}_n Y_e^0(r_n^0 r_n'^0) (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n|) + \right. \\ & + 12 \vec{e} (\vec{e} \cdot \vec{L}_n) Y_e^0(r_n^0 r_n'^0) (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_2(|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n|) - \\ & - 3 \vec{L}_n Y_e^0(r_n^0 r_n'^0) (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_2(|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\mathbf{r}'_p - \mathbf{r}'_n|) \} + \\ & + \text{konjugiert komplex.} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A II.6})$$

Der erste Term in (A II.6) hat seinen Ursprung in der endlichen Reichweite des Neutron-Proton-Potentials (es kommt u_2 nicht vor), die anderen in der Tensorkraft (sie sind linear in u_2). Nun ist genähert²⁴

$$u_2 \approx \frac{4}{100} u_1 \quad (\text{A II.7})$$

und wir erhalten die in § 3 erwähnte Abschätzung, daß in (A II.6) nur der erste Term wesentlich ist. Um zu sehen, daß er sehr klein ist, beachten wir, daß

$$(T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n|) = 0 \quad (\text{A II.8})$$

ist für $|\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n| > R$, der Reichweite der Kernkräfte. Nach der Variablensubstitution $\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_n = \mathbf{r}$ erhält man

$$\text{Sp} \{\vec{\sigma}_p 0\} = b \cdot \int_{\substack{|\mathbf{r}|, |\mathbf{r}'| \leq R \\ |\mathbf{r}_n - \mathbf{r}|, |\mathbf{r}'_n - \mathbf{r}'| \geq R_0}} d\tau_r d\tau'_r d\tau_p d\tau'_p g_e(r'_n) g_e^*(r_n) e^{i(k_p - k_d)(\mathbf{r}'_n - \mathbf{r}_n)} \times \left. \begin{aligned} & \times \vec{L}_n Y_e^0(r_n^0 r_n'^0) e^{i(k_p - \frac{1}{2} k_d)(\mathbf{r}' - \mathbf{r})} (T_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1(|\mathbf{r}|) (T'_{\text{rel}} - \varepsilon) u_1^*(|\mathbf{r}'|). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A II.9})$$

Nun ist R_0 , der Strippingradius, etwa gegeben durch Kernradius plus Reichweite der Kernkräfte und daher groß gegen R , die Reichweite der Kernkräfte. Daher ist die Bedingung $|\mathbf{r}_n - \mathbf{r}| \geq R_0$ praktisch gleichbedeutend mit $r_n \geq R_0$. Diese letztere Bedingung bringt aber (A II.9) zum Verschwinden. Darum trägt zu (A II.9) nur der Teil des Integrationsgebietes bei, der in einer „Umgebung“ von $r_n = R_0$ liegt. Deshalb sollte die aus (A II.9) zu berechnende Polarisierung sehr klein sein.

Anhang 3

$G^{(i)}$ und $H^{(i)}$ sind folgende Ausdrücke: Wir definieren den Operator O_e für eine stetige Funktion $s(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ der beiden Vektoren \mathbf{r} und \mathbf{r}' durch

$$O_e \cdot s(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int_{R_0}^\infty r^2 dr \int_{R_0}^\infty r'^2 dr' g_e^*(r) g_e(r') \int d\Omega \int d\Omega' f(k_d, \mathbf{r}) f^*(k_d, \mathbf{r}') \cdot s(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \quad (\text{A III.1})$$

²⁴ BLATT, J.M., u. V.F. WEISSKOPF: Siehe Fußnote 14 auf S. 395.

$\int d\Omega$ bedeutet die Integration über den Raumwinkel bezüglich \mathbf{r} . Dann ist mit der Definition $\alpha = a \cdot a^0$, $\alpha^{02} = 1$ für einen beliebigen Vektor \mathbf{a} und $\vec{L} = \frac{1}{i} [\mathbf{r} \times \nabla]$, $\vec{L} = \frac{1}{i} [\mathbf{r}' \times \nabla']$:

$$\left. \begin{aligned} G_e^{(1)} &= O_e \cdot e^{-i\vec{k}_p \mathbf{r}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \\ G_{Le}^{(2)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) e^{i\vec{k}_p \mathbf{r}'} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \\ G_{Le}^{(3)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) e^{i\vec{k}_p \mathbf{r}'} (\vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \cdot \vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')) \\ G_{LeL'}^{(4)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0') (\vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \cdot \vec{L} Y_{e'}^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')) \\ G_{LeL'}^{(5)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0') \\ G_{LeL'}^{(6)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') (\vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \cdot \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')) \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.2})$$

und

$$\left. \begin{aligned} H_{Le}^{(1)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) e^{i\vec{k}_p \mathbf{r}'} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') (\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0)) \\ H_{LeL'}^{(2)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0') \times \\ &\quad \times ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0)) \\ H_{LeL'}^{(3)} &= i O_e \cdot h_L^{(2)}(k_p r') e^{-i\vec{k}_p \mathbf{r}} ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot [\vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \times \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')]) \\ H_{LeL'}^{(4)} &= i O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \times \\ &\quad \times ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot [\vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \times \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')]) \\ H_{LeL'}^{(5)} &= O_e \cdot h_L^{(2)}(k_p r') e^{-i\vec{k}_p \mathbf{r}} Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0') ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')) \\ H_{LeL'}^{(6)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0') \times \\ &\quad \times ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')) \\ H_{LeL'}^{(7)} &= O_e \cdot e^{i\vec{k}_p (\mathbf{r}'-\mathbf{r})} ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')) \\ H_{LeL'}^{(8)} &= i \cdot O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \times \\ &\quad \times ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot [\vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \times \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')]) \\ H_{LeL'}^{(9)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') \times \\ &\quad \times (\vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0') \cdot \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')) ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0)) \\ H_{LeL'}^{(10)} &= O_e \cdot h_L^{(1)}(k_p r) h_{L'}^{(2)}(k_p r') \times \\ &\quad \times (\vec{L} Y_L^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0) \cdot \vec{L}' Y_{L'}^0(\vec{k}_p^0 \mathbf{r}^0')) \cdot ([\vec{k}_p \times \vec{k}_d]^0 \cdot \vec{L} Y_e^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0')). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.3})$$

Die Winkelintegrationen kann man leicht ausführen, wenn man die folgenden Formeln berücksichtigt:

$$\vec{L} Y_j^0(\alpha^0 \mathbf{r}^0) = \frac{1}{i} [\mathbf{r}^0 \times \alpha^0] \sum_{\substack{k=j-1, j-3, \dots \\ k \geq 0}} \sqrt{(2j+1)(2k+1)} Y_k^0(\alpha^0 \mathbf{r}^0), \quad (\text{A III.4})$$

$$\left. \begin{aligned} & \int d\Omega \int d\Omega' Y_{j_1}^0(\mathbf{a}^0 \mathbf{r}^0) Y_{j_2}^0(\mathbf{b}^0 \mathbf{r}^0) Y_{l'}^0(\mathbf{r}^0 \mathbf{r}^0) Y_{j_1'}^0(\mathbf{a}^0 \mathbf{r}^0) Y_{j_2'}^0(\mathbf{b}^0 \mathbf{r}^0) \\ &= \sum_J (-1)^{l+J} \sqrt{\frac{(2j_1+1)(2j_2+1)(2j_1'+1)(2j_2'+1)}{(2l+1)(2J+1)}} \times \\ & \quad \times c(j_1, j_2, l; 0, 0) c(j_1', j_2', l; 0, 0) \times \\ & \quad \times c(j_1', j_1', J; 0, 0) c(j_2, j_2', J; 0, 0) W(j_1, j_1', j_2, j_2', l, J) Y_J^0(\mathbf{a}^0 \mathbf{b}^0), \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.5})$$

$$\left. \begin{aligned} & \int Y_{j_1}^0(\mathbf{a}^0 \mathbf{r}^0) Y_{j_2}^0(\mathbf{b}^0 \mathbf{r}^0) Y_{j_3}^0(\mathbf{c}^0 \mathbf{r}^0) d\Omega = \sum_{m_1, m_2} \frac{4\pi}{2j_3+1} c(j_1, j_2, j_3; 0, 0) \times \\ & \quad \times c(j_1, j_2, j_3; m_1, m_2) Y_{j_1}^{*m_1}(\mathbf{a}^0, \mathbf{b}^0) Y_{j_2}^{*m_2}(\mathbf{b}^0, \mathbf{b}^0) Y_{j_3}^{m_1+m_2}(\mathbf{c}^0, \mathbf{b}^0). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.6})$$

Dabei ist \mathbf{b}^0 ein beliebiger Vektor mit $\mathbf{b}^{02}=1$; $c(j_1, j_2, l; m_1, m_2)$ und $W(j_1, j_1', j_2, j_2'; l, J)$ sind die bei ROSE²⁵ definierten Clebsch-Gordan- und Racah-Koeffizienten, und $Y_l^m(\mathbf{a}^0, \mathbf{b}^0)$ ist die normierte Kugelflächenfunktion mit \mathbf{b}^0 als Polarachse.

Mit diesen Formeln gewinnt man z. B. für $G_e^{(1)}$ folgenden Ausdruck: Wir setzen

$$\left. \begin{aligned} g_e(r) &= A \cdot i \cdot h_e^{(1)}(i\beta r), \quad F_e(\vec{k}_p, \vec{k}_d) = \frac{1}{R_0^3} \int_{R_0}^{\infty} \frac{g_e(r)}{A} j_e(|\vec{k}_p - \vec{k}_d| r) r^2 dr \\ \gamma_{Ld} e L' &= \frac{1}{R_0^3} \int_{R_0}^{\infty} \frac{g_e(r)}{A} \cdot j_{L'}(k_p r) h_{L_d}^{(1)}(k_d r) r^2 dr. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.7})$$

Dann ist

$$\left. \begin{aligned} G_e^{(1)} &= |A|^2 R_0^6 \left[4\pi \sqrt{4\pi(2l+1)} |F_e(k_p, k_d)|^2 + 2 \operatorname{Re} \left\{ \sum_{L_d L'} (4\pi)^2 i^{e+L'-L_d} \times \right. \right. \\ & \quad \times \sqrt{2L_d+1} (2L'+1) \delta_{L_d}^* F_e(\vec{k}_p, \vec{k}_d) \gamma_{L_d}^* e L' \sum_{m_1, m_2} \frac{4\pi}{2l+1} c(L_d, L', l; 0, 0) \times \\ & \quad \times c(L_d, L', l; m_1, m_2) Y_{L_d}^{*m_1}(k_p^0 [k_p \times k_d]^0) Y_{L'}^{*m_2}(k_p^0, [k_p \times k_d]^0) Y_e^{m_1+m_2} \times \\ & \quad \times ((k_p - k_d)^0, [k_p \times k_d]^0) \left. \right\} + (4\pi)^2 \cdot \sum_{L L' L_d L_d' J} (-1)^{l+J} i^{L_d-L_p'+L-L'} \times \\ & \quad \times \gamma_{L_d} l L \gamma_{L_d' l L'}^* \delta_{L_d}^* \delta_{L_d'}^* \frac{(2L+1)(2L'+1)(2L_d+1)(2L_d'+1)}{\sqrt{(2l+1)(2J+1)}} \times \\ & \quad \times c(L, L_d, l; 0, 0) c(L', L_d', l; 0, 0) c(L, L', J; 0, 0) c(L_d, L_d', J; 0, 0) \times \\ & \quad \times W(L, L_d, L', L_d'; e, J) Y_J^0(k_p^0 \cdot k_d^0) \left. \right]. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A III.8})$$

Entsprechende Ausdrücke ergeben sich für die $G^{(i)}$, $H^{(i)}$, die ihres Umfanges wegen hier nicht angegeben werden sollen. Der erste Term in $G^{(1)}$ ist die übliche Bornsche Näherung, die restlichen Terme sind linear oder quadratisch in den δ_{L_d} .

²⁵ ROSE, M.E.: Multipole Fields. New York: John Wiley & Sons 1955.

Aus dem Physics Dept. der Univ. of Illinois, Urbana, Ill.

Transformation of “Spin Direction” by Ordinary Lorentz Transformation

By
GIULIO ASCOLI

With 4 figures in the text
(Eingegangen am 5. Dezember 1957)

According to the usual definition the “spin direction” of a free polarized spin $1/2$ particle in a sharp momentum state (plane wave) is the direction of the angular momentum in the rest frame of the particle. With this definition the “spin direction” is the same in two frames of reference whose relative velocity is parallel to the particle momentum, measured in either frame. Even in the more general case it is perhaps misleading to speak of the transformation of the spin direction; it is more nearly a case of keeping track of the transformation of the physical vectors (momenta) which define the coordinate axes used to specify “spin direction”. In any case one can readily see what happens and obtain the required transformations if one uses an intermediate frame in which the particle is at rest, since the two LORENTZ transformations involved are parallel to the momentum of the particle.

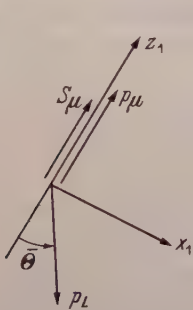


Fig. 1. S_1 (π -meson frame). p_L is the momentum vector of the reference object at rest in the laboratory

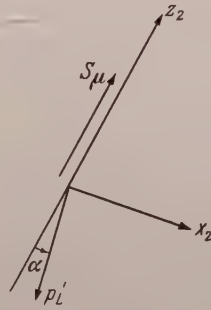


Fig. 2. S_2 (μ -meson frame)

In considering a $\pi-\mu$ decay in flight, I shall assume, to be definite, that the spin of the μ -meson is parallel to its momentum in the π -meson rest frame. Other cases could be treated in the same way. To make the steps simple I consider in turn four sets of axes S_1 , S_2 , S_3 and S_4 and describe in detail how spins and momenta are oriented in each. For convenience I shall consider how some (arbitrary) object at rest in the laboratory moves relative to the various sets of axes.

The set of axes S_1 is in the rest frame of the π -meson. The μ -meson momentum and spin both point along z_1 .

The plane of decay is z_1, x_1 and the μ is emitted at a "center of mass angle" $\bar{\Theta}$.

We now transform to a set of axes S_2 in the rest frame of the μ -meson. The μ -meson spin points in the same direction relative to the S_2 axes as it did relative to S_1 , by definition. The reference object moves at a smaller angle with the $-z_2$ axis: call this angle α .

We readily get α by considering the Lorentz transformation, from S_1 to S_2 , of the momentum of the reference object.

$$\tan \alpha = \frac{p_L(x_2)}{-p_L(z_2)} = \frac{p_L \sin \bar{\Theta}}{\left(\frac{p_L \cos \bar{\Theta} + \beta_0 U_L}{\sqrt{1 - \beta_0^2}} \right)},$$

p_L, U_L, β_L are the magnitudes of the momentum, the total energy, and velocity* of the reference object in S_1 .

β_0 is the transformation velocity and is therefore equal to the speed of the μ -meson relative to the π ($\beta_0 = \frac{m_\pi^2 - m_\mu^2}{m_\pi^2 + m_\mu^2}$).

β_L is the same as the velocity β_π of the π -meson in the laboratory. Therefore:

$$\tan \alpha = \frac{\sin \bar{\Theta}}{\cos \bar{\Theta} + \frac{\beta_0}{\beta_\pi}} \sqrt{1 - \beta_0^2}. \quad (1)$$

It is now quite easy to show that α is also the angle in the laboratory between the μ -meson spin and the μ -meson momentum.

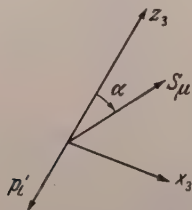


Fig. 3. S_3 (μ -meson frame)

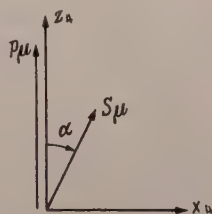


Fig. 4. S_4 (Laboratory frame)

To this end we consider next another set of axes S_3 , also in the rest frame of the μ -meson, but rotated so that the reference object moves along $-z_3$:

in S_3 the meson spin is at an angle α with the z_3 -axis. We finally transform to the laboratory axes S_4 in which our reference object is finally at rest. The μ -meson travels along the z_4 axis and its spin makes the same angle α with z_4 and therefore with the μ -meson momentum.

* We take units such that $c \equiv 1$.

Aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt

Über den Einfluß allseitigen Drucks auf die Magnetisierbarkeit von Au_2Mn

Von

KURT HANS V. KLITZING und JOHANNES GIELESSEN

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. Dezember 1957)

Untersucht wurde die Magnetisierung einer polykristallinen Au_2Mn -Probe in Abhängigkeit von der Feldstärke und von einem gleichzeitig einwirkenden hydrostatischen Druck. Der allseitige Druck erhöht die Magnetisierbarkeit in dem untersuchten Feldstärkebereich ($\mu_0 H = 1,5 \text{ Wb/m}^2$). Die Magnetisierung bei $\mu_0 \cdot H = 1,0 \text{ Wb/m}^2$ ($H = 10000 \text{ Oe}$) steigt bei einem allseitigen Druck von 4500 kp/cm^2 auf den $2\frac{1}{2}$ -fachen Wert. Im Rahmen der Neelschen Theorie kann der Effekt gedeutet werden entweder als Verminderung der antiferromagnetischen Austauschenergie der beteiligten Untergitter infolge Verringerung des Gitterabstandes oder als Beeinflussung der Anisotropiekonstanten.

Problemstellung

Die Verbindung Au_2Mn zeichnet sich nach den Untersuchungen verschiedener Verfasser¹⁻⁴ durch ihr ganz ungewöhnliches magnetisches Verhalten aus. Die Legierung verhält sich bei Zimmertemperatur bis zu Werten der Leerinduktion $B_0 = \mu_0 \cdot H \approx 0,8 \text{ Wb/m}^2$ (Feldstärke 8000 Oe) paramagnetisch; oberhalb dieses Wertes erfolgt ein steiler Anstieg, der erst in der Nähe von $B_0 = 3 \text{ Wb/m}^2$ (30000 Oe) allmählich in die Sättigung übergeht. Trotz der ziemlich hohen Sättigungsmagnetisierung ($B_i = B - B_0 = 0,52 \text{ Wb/m}^2$) zeigen sich Hystereseeigenschaften nicht oder nur andeutungsweise². Der Curie-Punkt liegt etwa bei 90° C .

Dieses merkwürdige Verhalten wird sowohl von MEYER und TAGLANG⁴ als auch von KUSSMANN und RAUB² gedeutet als ein Übergang von Antiferromagnetismus zu Ferromagnetismus in dem Sinne, daß eine ursprünglich antiparallele Kopplung benachbarter Spinnomente durch ein äußeres Magnetfeld aufgehoben und schließlich in eine Parallelstellung umgewandelt wird. Von NÉEL⁵ ist diese Deutung theoretisch behandelt worden. Danach kann das Kristallgitter von Au_2Mn aufgefaßt werden als Kombination von zwei gleichwertigen Untergittern, von

¹ MEYER, A. J. P., u. P. TAGLANG: C. R. Acad. Sci., Paris **239**, 961, 1611 (1954).

² KUSSMANN, A., u. E. RAUB: Z. Metallkde. **47**, 9 (1956).

³ RAUB, E., U. ZWICKER u. H. BAUR: Z. Metallkde. **44**, 312 (1953).

⁴ MEYER, A. J. P., u. P. TAGLANG: J. Phys. Radium **17**, 457 (1956).

⁵ NÉEL, L.: C. R. Acad. Sci., Paris **242**, 1549 (1956).

denen jedes Parallelstellung der atomaren Spinnmomente zeigt, deren ferromagnetische Momente jedoch bei Fehlen eines äußeren Feldes antiparallel gegeneinander ausgerichtet sind und sich daher gegenseitig kompensieren. Unter der Annahme, daß die Energie der antiferromagnetischen Kopplung der beiden Untergitter miteinander klein ist gegen die ferromagnetische Austauschenergie innerhalb jedes der beiden Untergitter, ergibt sich die Möglichkeit eines Überganges vom antiferromagnetischen in den ferromagnetischen Zustand durch Einwirkung eines äußeren Feldes, sobald ein bestimmter Schwellenwert der Feldstärke erreicht ist.

In diesem Zusammenhang erschien es interessant, den Einfluß allseitigen Drucks auf die Magnetisierbarkeit von Au_2Mn zu untersuchen. Allseitiger Druck verringert den Gitterabstand; er ändert somit den Wert der Austauschenergie. Bei reinen Metallen ist dieser Einfluß nur gering; Messungen haben gezeigt^{6,7}, daß der Sättigungswert von Eisen und Nickel unter allseitigem Druck sich nur sehr wenig ändert. Beträchtliche Änderungen zeigen jedoch manche Legierungen, wie z. B. die kubisch-flächenzentrierten Fe-Ni-Legierungen in der Nähe von 30 % Ni, deren Gitter sich bei Zimmertemperatur — verhältnismäßig dicht oberhalb des Martensitpunktes — in einem metastabilen Zustand befindet. Allseitiger Druck bewirkt hier eine Abnahme der Sättigung, vermutlich infolge einer entsprechenden Herabsetzung der Austauschenergie als Folge des verringerten Gitterabstandes.

Wendet man diese Vorstellung auf Au_2Mn und die von NÉEL gegebene Deutung seiner magnetischen Eigenschaften an, so würde ein allseitiger Druck eine Beeinflussung vor allem der schwachen antiferromagnetischen Wechselwirkung zwischen den beiden Untergittern erwarten lassen. Wenn der allseitige Druck die antiferromagnetische Kopplung der beiden Gitter verringert, müßte dies zu einer Herabsetzung des Schwellenwertes der Feldstärke führen, also den Übergang von Antiferromagnetismus zu Ferromagnetismus erleichtern. Im Falle einer Vermehrung der Kopplung durch allseitigen Druck würde umgekehrt der antiferromagnetische Zustand begünstigt werden.

Versuchsanordnung

Zur Verfügung stand eine bis dahin nicht benutzte Au_2Mn -Probe des von KUSSMANN und RAUB² untersuchten Materials. Die genannten Verfasser hatten einen flacheren Verlauf der Magnetisierungskurve gefunden als MEYER und TAGLANG^{1,4} bei ihren Proben. Da thermische Behandlung keine wesentliche Steigerung der Werte erreichen ließ, könnte an sich der Grund für diese Differenz in irgendwelchen Verun-

⁶ EBERT, H., u. A. KUSSMANN: Phys. Z. **38**, 437 (1937).

⁷ KLITZING, K. H. v., u. J. GIELESSEN: Z. Physik **146**, 59 (1956).

reinigungen gesucht werden. Spektralanalytische Untersuchung der Probe ergab als Verunreinigungen indessen nur Spuren von Cu und Ag, so daß diese Erklärungsmöglichkeit fortfällt.

Die Probe hatte anfänglich die Form eines runden Stäbchens von 5 mm Durchmesser. Sie wurde in der Reduziermaschine auf 3 mm Durchmesser ausgehämert. Darauf folgte eine Glühbehandlung bei 900°C

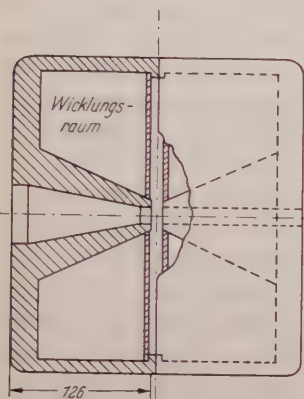


Fig. 1. Topfmagnet

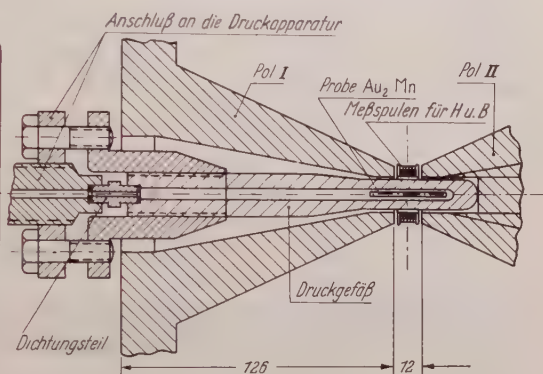


Fig. 2. Meßanordnung mit Druckgefäß

für 2 Std im Salzbad, um Rekristallisation zu ermöglichen, anschließend eine Temperung von 48 Std bei 690°C zur Herstellung der geordneten Atomverteilung.

Zur Erzeugung des Magnetfeldes diente ein Topfmagnet mit axialer Bohrung, der in Fig. 1 im Schnitt gezeichnet ist. Fig. 2 gibt eine Schnittzeichnung des in den Magneten eingeschobenen Druckrohrs mit Probe und Meßspulen. Der Außendurchmesser des verwendeten Druckgefäßes betrug 15 mm, der Innendurchmesser 5 mm. Das Druckgefäß (Fig. 2) bestand aus rostfreiem Stahl (Phönix - Edelweiß MA 2;

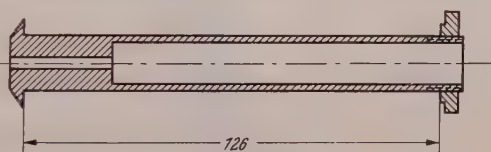


Fig. 3. Polschuhform für 4 mm Polabstand

18% Cr, 8% Ni, 0,25% C) und war vor Beginn der Messungen mit einem hydrostatischen Druck von 5000 kp/cm^2 belastet worden, um durch Vordehnung eine Kaltaushärtung des Materials zu erreichen und damit eventuell spätere Änderungen vorweg zu nehmen. Bei dieser Vordehnung hatte sich ein Teil des an sich unmagnetischen Materials durch Martensitbildung in ferromagnetische raumzentrierte Phase verwandelt. Dieser Einfluß mußte bei den Messungen besonders berücksichtigt werden.

Fig. 3 zeigt im Schnitt die Form der eingesetzten Polschuhe, durch die der Polabstand auf 4 mm verringert werden konnte. Diese Polschuhe

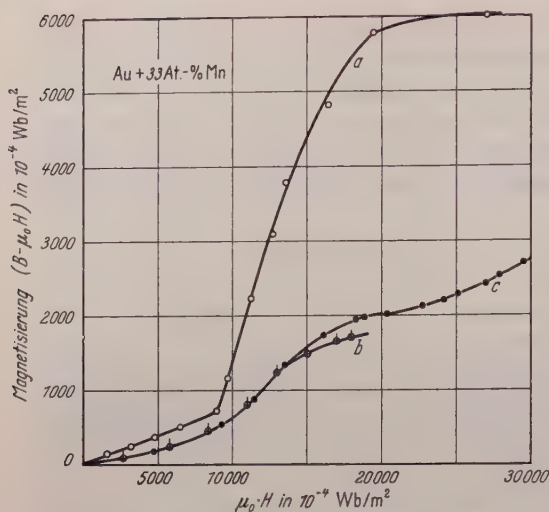


Fig. 4. Magnetisierung von Au_2Mn in Abhängigkeit von der Leerinduktion. *a* Messungen von MEYER und TAGLANG, *b* Messungen von KUSSMANN und RAUB, *c* Messungen der Verfasser

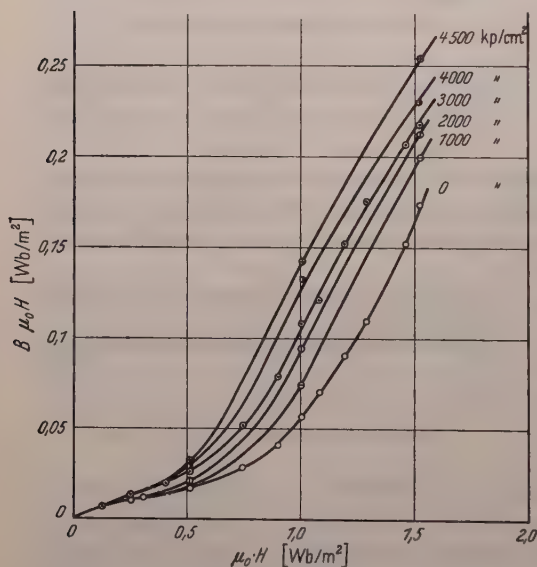


Fig. 5. Magnetisierung in Abhängigkeit von der Leerinduktion bei verschiedenen Druckwerten

ermöglichten Messungen der Magnetisierung bei höheren Feldstärken ohne gleichzeitige Druckanwendung.

Der Druck wurde mit zwei hintereinander geschalteten Handkolbenpumpen erzeugt. Die erste Handpumpe komprimiert die Druckflüssigkeit, aus 2 Teilen Paraffinöl, 1 Teil Dekalin und 1 Teil Petroleum bestehend, auf etwa 1500 kp/cm^2 . Mit der zweiten Pumpe wird dann diese Flüssigkeit auf den jeweiligen Druck gebracht. Die Anlage wird demnächst beschrieben werden. Mit einem Stabmanometer mit exzentrischer Bohrung⁸ wurde der Druck bestimmt.

Meßergebnisse

Fig. 4 zeigt zunächst vergleichsweise die bei Zimmertemperatur an Au_2Mn gemessenen Magnetisierungskurven *a*) von MEYER und TAGLANG, *b*) von KUSSMANN und RAUB, *c*) der vorliegenden Untersuchung. Beim Vergleich der Kurven fällt auf, daß die Kurve *a*) wesentlich steiler ansteigt und offenbar schon bei kleineren Feldern die Sättigung erreicht als die Kurven *b*) und *c*). Ferner fällt bei Kurve *c*) die Einsattelung bei $B_0 = 2,0 \text{ Wb/m}^2$ auf,

⁸ GIELESEN, J.: Z. angew. Phys. 8, 193 (1956).

der bei weiterer Feldsteigerung ein erneuter stärkerer Anstieg folgt. KUSSMANN und RAUB konnten diese letztere Eigentümlichkeit ihres Materials nicht bemerken, weil die von ihnen benutzte Anordnung keine höheren Werte der Leerinduktion als $1,8 \text{ Wb/m}^2$ erlaubte. Da die Verunreinigungen in dem von KUSSMANN und RAUB sowie von uns benutzten Material für eine Erklärung der Diskrepanz nicht ausreichen, mußte die Möglichkeit eines Textureinflusses in Betracht gezogen werden. Eine röntgenographische Prüfung ergab indessen, daß zwar in einzelnen Teilen der Probe größere Kristallite vorhanden waren, daß jedoch von einer ausgeprägten Textur keine Rede sein konnte. Inwieweit bei MEYER und TAGLANG die Kristallorientierung eine Vorzugslage aufwies, ist nicht bekannt.

Die Fig. 5 und 6 stellen nun die Meßergebnisse bei höheren Drucken dar. Infolge des mit Rücksicht auf das Druckgefäß erforderlichen größeren Polabstandes konnten maximal nur Werte von $B_0 = 1,52 \text{ Wb/m}^2$ erreicht werden. Fig. 5 gibt die Magnetisierung in Abhängigkeit von der Feldstärke bei festgehaltenen Drucken. Fig. 6 ihre Abhängigkeit vom Druck bei festgehaltenen Feldstärkewerten wieder. Im ganzen bewirkt der allseitige Druck eine erhebliche Steigerung der Magnetisierung von Au_2Mn , insbesondere wird der Beginn des Steilanstiegs der Magnetisierungskurve zu kleineren Feldstärken hin verschoben.

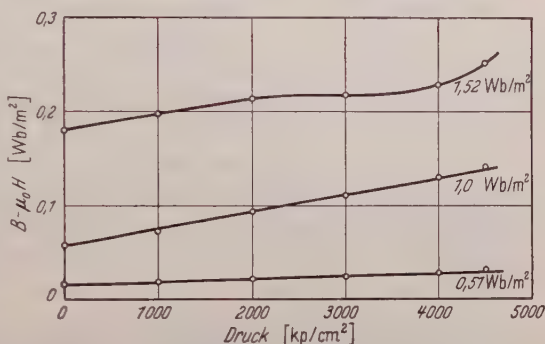


Fig. 6. Magnetisierung in Abhängigkeit vom Druck bei verschiedenen Werten der Leerinduktion

Erörterung der Ergebnisse

Dieses Ergebnis läßt im Rahmen der Néelschen Vorstellungen zunächst drei verschiedene Deutungen zu:

1. Allseitiger Druck bewirkt eine Erhöhung der Austauschkopplung innerhalb jedes der beiden Untergitter, also ihrer Gesamtmomente.

2. Die spontane Magnetisierung der beiden Untergitter bleibt ungeändert, aber die antiferromagnetische Kopplung, die die Antiparallelstellung beider Spingitter ohne äußeres Feld bewirkt, wird durch allseitigen Druck abgeschwächt, die Parallelstellung beider Gitter durch ein äußeres Feld somit erleichtert.

3. Der allseitige Druck übt einen Einfluß auf die Anisotropiekonstanten aus und verschiebt auf diese Weise die Grenzen der Stabilitäts-

bereiche des ferromagnetischen und des antiferromagnetischen Zustandes.

Infolge des — verglichen mit den Messungen von MEYER und TAGLANG — flacheren Verlaufs der Magnetisierungskurve bei unseren Proben war es auch mit den höchsten zur Verfügung stehenden Feldstärken nicht möglich, die Sättigung zu erreichen. Aus diesem Grunde kann auch noch nichts darüber ausgesagt werden, ob allseitiger Druck den Sättigungswert beeinflußt. Die Messungen zeigen indessen deutlich einen steileren Anstieg im Anfangsteil der Kurve bzw. das Eintreten des ferromagnetischen Zustandes bei kleineren Feldstärken unter Druckeinwirkung. Dieses Resultat spricht mehr für eine der beiden unter 2. und 3. aufgeführten Deutungsmöglichkeiten, also entweder für eine Schwächung der antiferromagnetischen Kopplung oder für eine Beeinflussung der Anisotropiekonstanten durch allseitigen Druck.

Eine Entscheidung zwischen den beiden letztgenannten Möglichkeiten kann auf Grund der vorliegenden Meßergebnisse nicht getroffen werden. Hierzu wären weitere Messungen, vor allem auch Messungen über den Druckeinfluß auf die Magnetisierung bei höheren Feldstärken und höheren Temperaturen erforderlich, wobei die Benutzung von Einkristallproben von besonderem Wert sein würde.

Für die Durchführung der spektralanalytischen und der röntgenographischen Untersuchungen sind wir den Herren Dr. HÜBNER und Dr. WEYERER zu Dank verpflichtet.

Herrn Professor Dr. KUSSMANN danken wir für die Überlassung des Probenmaterials.

Aus dem Physikalischen Institut der Technischen Hochschule, München, und dem Institut für Tieftemperaturforschung der Bayerischen Akademie der Wissenschaften, Herrsching

Die magnetischen Eigenschaften von seltenen Erdmetallen bei sehr tiefen Temperaturen

Von

HUGO LEIPFINGER

Mit 11 Figuren im Text

(Eingegangen am 21. November 1957)

Die magnetischen Eigenschaften der seltenen Erdmetalle Ce, Pr, Nd, Sm, Tb, Dy, Ho, Tm und Yb wurden bis $1,5^\circ$ K herab untersucht.

Die allgemeinen Ergebnisse sind:

1. Die Ionen, die das Metallgitter des Ce, Pr, Nd, Sm und Dy aufbauen, sind die gleichen wie in den Salzen oder Oxyden, also die dreiwertigen Ionen. Das Yb-Gitter ist vorwiegend aus den zweiwertigen Ionen aufgebaut. Der kleine Paramagnetismus entspricht 2% Yb^{3+} -Ionen, kann aber auch durch Verunreinigung verursacht sein.
2. Die bei den Salzen auftretenden Abweichungen vom Curie-Weißschen Gesetz sind durch die Kristallfeldaufspaltung der Elektronenterme verursacht. In den Metallen ist diese Aufspaltung klein, wenn überhaupt vorhanden.
3. Die Austauschwechselwirkung führt bei den Metallen in den meisten Fällen entweder zu Ferromagnetismus oder Antiferromagnetismus.
4. Vermutlich gilt eine Regel, nach der bei sehr tiefen Temperaturen die Metalle der ersten Hälfte, Ce bis Eu, antiferromagnetisch, die Metalle der zweiten Hälfte dagegen ferromagnetisch werden. Bei Pr, Dy und Yb, die nur in Pulverform vorlagen, wurde keiner der beiden Fälle beobachtet, obwohl der Ferromagnetismus des kompakten Dy bekannt ist.

I. Einleitung

Freie Atome mit magnetischem Moment

$$p = g J \mu_B \quad (1)$$

(g = Landé-Faktor, J = innere Quantenzahl, μ_B = Bohrsches Magneton) geben bekanntlich bei der Temperatur T die Molsuszeptibilität¹

$$\chi = \frac{L^2 g^2 J(J+1) \mu_B}{3 R T} = \frac{L^2 p^2}{3 R T} \cdot \frac{J+1}{J} = \frac{C}{T} \quad (2)$$

(C = Curiesche Konstante). Um aus C das Moment p zu bestimmen, ist die Kenntnis von J notwendig. Gewöhnlich gibt man aber p in

¹ Vgl. z.B. Joos, G.: Lehrbuch der theoretischen Physik, 9. Aufl., S. 600. Leipzig 1956.

effektiven Magnetonen an, wobei der Faktor $(J+1)/J$ gleich 1 gesetzt wird. n_{eff} entspricht der ohne Richtungsquantelung von J abgeleiteten Magnetonenzahl. Besteht eine Wechselwirkung der Atome, so kann bei Temperaturen oberhalb des Übergangs zum Ferro- oder Antiferromagnetismus χ durch das Curie-Weißsche Gesetz

$$\chi = \frac{C}{T - \Theta} \quad (3)$$

mit derselben Bedeutung von C wie in (2) wiedergegeben werden. Dies gibt noch immer eine lineare Beziehung zwischen $1/\chi$ und T . Je nach dem Vorzeichen der durch das Heisenbergsche Austauschintegral gegebenen Temperatur Θ wird der Körper bei $T = \Theta > 0$ ferromagnetisch bzw. erreicht er bei $T = -\Theta$ ein Maximum der Suszeptibilität (Antiferromagnetismus). Bei tiefen Temperaturen ist der Zusammenhang zwischen $1/\chi$ und T in den meisten Fällen nicht mehr linear. Dies hat folgende Gründe:

A. Durch das Feld der umgebenden Ionen oder der Leitungselektronen werden die Terme des freien Systems in eine Anzahl Unterterme aufgespalten. Jedem von ihnen entspricht ein anderes magnetisches Verhalten, gemäß dem jeweiligen g -Faktor. Sie sind entsprechend der Boltzmann-Verteilung besetzt. Es ist also beim absoluten Nullpunkt der tiefste Term allein besetzt. Schon bei mittleren Temperaturen sind die Unterniveaus nahezu gleich besetzt. In diesem Fall ergibt sich ein Magnetismus, als ob die Aufspaltung nicht existieren würde.

B. Die zum Ferro- oder Antiferromagnetismus führenden Wechselwirkungen zwischen benachbarten Atomen bzw. Ionen treten in Erscheinung. Damit ist eine Feldabhängigkeit von χ verbunden.

Bei den Ionen der Eisengruppe lassen sich die beiden Effekte schwer trennen, weil die Elektronenschale, die für das magnetische Verhalten verantwortlich ist, die $3d$ -Schale ist, die ganz außen liegt und so durch die umgebenden Ionen sehr stark beeinflusst wird. Viel günstiger liegen die Verhältnisse bei den seltenen Erden, weil hier die $4f$ -Schale für den Magnetismus verantwortlich und diese von der vollbesetzten $5s$ - und $5p$ -Schale umgeben ist. Dadurch haben die $4f$ -Elektronen keinen unmittelbaren Kontakt mit den umgebenden Ionen oder Leitungselektronen.

Bei den *Salzen* der S.E. tritt nach dem großen, hauptsächlich aus der Leidener Schule stammenden Material wohl nur der Effekt A auf. Die Lage des Aufspaltungsniveaus kann optischen Messungen entnommen, ihre g -Werke mittels der Theorie der Kristallfeldaufspaltung² berechnet und so ein Vergleich mit den Beobachtungen durchgeführt

² Vgl. z.B. Handbuch der Physik, 2. Aufl., Bd. 28, S. 205 ff. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1957.

werden, was DIEKE und HEROUX³ bei Nd-Salzen gelang. Im Gegensatz dazu ist bekannt, daß einige seltene Erdmetalle ferromagnetisch werden. Somit kann man hoffen, durch die Untersuchung des magnetischen Verhaltens dieser Metalle bei tiefen Temperaturen neue Erkenntnisse über die Austausch-Wechselwirkung der Ionen zu gewinnen. Die Verhältnisse liegen noch besser als erwartet: Allem Anschein nach geben die Leitungselektronen ein viel kleineres Feld als die Salzionen, so daß der Magnetismus in den meisten Fällen die reinen Austauscheffekte wiedergibt.

Weiter ist es nicht selbstverständlich, daß die Gitterbausteine der Metalle, wie bei den Salzen, die dreiwertigen Ionen sind. Auch diese Frage wird durch die Messung der Suszeptibilitäten der Metalle beantwortet.

In dieser Arbeit wurden die Metalle Ce, Pr, Nd, Sm, Tb, Dy, Ho, Tm und Yb untersucht. Die Messungen zwischen 1,5 und 20° K wurden im Tieftemperaturinstitut der Bayerischen Akademie der Wissenschaften, die bei höheren Temperaturen im Physikalischen Institut der Technischen Hochschule München ausgeführt.

II. Die Meßanordnung

1. Die Meßmethode. Es wurde die Gouysche Wägemethode in der Form angewandt, daß die Kraft auf eine kleine Probe im inhomogenen Feld gemessen wird, wobei die Ausdehnung der Probe so klein gewählt ist, daß Feld H (waagrecht) und Feldgradient dH/dz (senkrecht) innerhalb der Probe in erster Näherung als konstant angenommen werden können. Ist σ die Magnetisierung der Probe, V ihr Volumen, so beträgt die mit der Waage gemessene senkrechte Kraft

$$K = \sigma V \frac{dH}{dz}. \quad (4)$$

Ist die Ausdehnung der Probe so, daß die Änderung der Feldgrößen in Rechnung zu setzen ist, so wird für para- und diamagnetische Stoffe bei einer g -Suszeptibilität χ_g und Dichte ϱ (bei Pulvern Schüttdichte)

$$K = \chi_g \varrho \int H \frac{dH}{dz} dV = \chi_g \frac{m}{2V} \int \frac{dH^2}{dz} dV. \quad (5)$$

Macht man das Meßvolumen immer gleich groß und bringt die Probe immer an dieselbe Stelle, so ist $\frac{1}{V} \cdot \int \frac{dH^2}{dz} dV$ eine Apparatkonstante, die durch Messung mit Stoffen bekannter Suszeptibilität ermittelt werden kann. Als solche dienten $\text{CuSO}_4 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$, $\text{CuSO}_4(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{CuSO}_4\text{K}_2\text{SO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ mit den Werten von DE HAAS, GORTER und von

³ DIEKE, G. H., u. L. HEROUX: Phys. Rev. **103**, 1227 (1956).

REEKIE^{4,5}. Selbst wenn das Volumen bei der Eichung und Messung einen kleinen durch die Meßungenauigkeit gegebenen Fehler aufweist, wirkt sich dieser nur dann aus, wenn dH^2/dz sich über die Probe etwas ändert, da bei konstantem dH^2/dz in (5) sich V heraushebt. Da sich die Proben nicht im Vakuum, sondern wegen des besseren Wärmeaustausches in Heliumgas von 1 Torr befanden, müßte noch eine Korrektur für den „magnetischen Auftrieb“ angebracht werden. Diese ist aber kleiner als 10^{-4} des Betrages von χ_g und liegt damit weit unter der Meßgenauigkeit, so daß die Korrektur weggelassen wurde.

Ist χ feldstärkenabhängig, wird aus (4) mit Einführung der Magnetisierung pro Gramm σ_g für die Masse m

$$K = \frac{m}{V} \int \sigma_g \frac{dH}{dz} dV \approx \frac{m}{V} \bar{\sigma}_g \int \frac{dH}{dz} dV \quad (6)$$

für eine paramagnetische Vergleichssubstanz mit χ'_g wird bei einem mittleren Feld \bar{H} und gleichem Volumen

$$K' = \frac{m'}{V} \chi'_g \bar{H} \int \frac{dH}{dz} dV. \quad (7)$$

Die Apparatekonstante ist jetzt $\frac{1}{V} \int \frac{dH}{dz} dV$ und man erhält

$$\bar{\sigma}_g = \frac{K}{K'} \cdot \frac{m'}{m} \chi'_g \bar{H}. \quad (8)$$

Wegen des fast konstanten Werts von dH/dz kann für \bar{H} der Wert von H in der Mitte der Probe gesetzt werden, ebenso kann $\bar{\sigma}_g$ mit σ_g identifiziert werden, so daß wir den Strich künftig weglassen. Aus der Grammsuszeptibilität χ_g ergibt sich die Molsuszeptibilität χ durch Multiplikation mit dem Molekulargewicht (bei den Metallen dem Atomgewicht). Bei den Ferro(Antiferro-)magneticis wurde die Magnetisierung σ_g angegeben, jedoch in einigen Fällen auch die molare Anfangssuszeptibilität χ bestimmt.

2. Der Magnet. Die Pole hatten einen runden Querschnitt von 72 mm Durchmesser. Um ein stark inhomogenes Feld zu erhalten, waren die Stirnflächen der Pole um $18,5^\circ$ gegen die Vertikale geneigt. Der kleinste Polabstand betrug 70 mm. Auf jedem Polschuh saßen 3 Spulen mit je etwa 3200 Windungen. Die 6 Spulen waren parallelgeschaltet. Mit einem Potentiometer und 5 Vorwiderständen konnte der Gesamtspulenstrom zwischen 0 und 15 Amp kontinuierlich eingestellt werden. Bei den Messungen war der maximale Gesamtstrom 13 Amp.

⁴ HAAS, W. J. DE, u. C. J. GORTER: Comm. Kamerlingh Onnes Lab. 210d Leiden 1930.

⁵ REEKIE, J.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A 173, 367 (1939).

Das Magnetfeld wurde mit folgender Anordnung ausgemessen⁶: Durch Rotation einer Probespule (2 mm Durchmesser) im Magnetfeld wurde in dieser eine Wechsellspannung induziert. Diese wurde in einer Brückenschaltung mit der Wechsellspannung verglichen, die in einer zweiten kleinen Spule induziert wurde, die im anderwärts ermittelten Feld eines Permanentmagneten rotierte. Beide Spulen wurden vom gleichen Synchronmotor angetrieben*. Zur Reproduktion des Feldes genügte die Einstellung auf gleichen Strom in den Wicklungen.

3. Die Waage. Die Waage war eine Spannbandwaage mit horizontalem Torsionsfaden. Der Faden hatte 0,15 mm Durchmesser und bestand aus einer Contracid-Beryllium-Legierung. Zur Spannung des Fadens diente ein Gewicht von 200 g. Der Waagebalken (1) (s. Fig. 1) trug einen Spiegel (2), über den die jeweilige Stellung der Waage über einen Lichtzeiger auf einer Skala angezeigt wurde. An der einen Seite des Waagebalkens hing eine Gewichtsschale (3) und daran die Probe (4) an einem Kunstseidenfaden, auf der anderen Seite ein Ferritkern (6). Auf das Schälchen wurden die

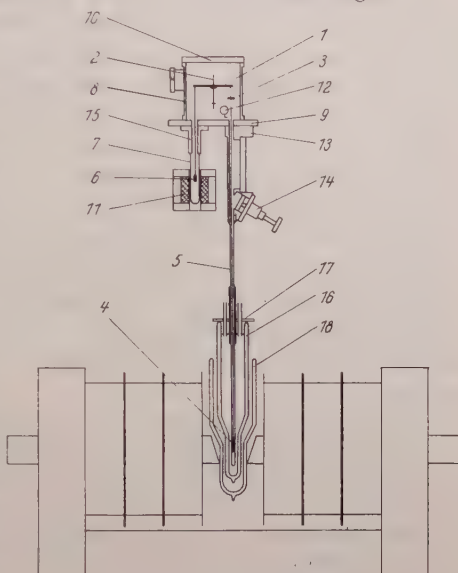


Fig. 1. Skizze der Apparatur

Gewichte aufgelegt, die notwendig waren, um die Waage ohne Magnetfeld grob auszugleichen. Der Feinausgleich wurde durch Veränderung der Torsionsvorspannung des Torsionsfadens herbeigeführt. Durch das Anheben zweier Auflager konnte die Waage arretiert werden.

Die Empfindlichkeit der Waage betrug $2,3 \frac{\text{mm}}{\text{m} \cdot \text{mg}}$. Dieser Wert war konstant, bis die Waage bei 2 g Belastung instabil wurde.

4. Die Kompensationseinrichtung. Die auf die Probe wirkende Kraft wurde durch eine Nullmethode bestimmt; sie wurde durch die Kraft kompensiert, die auf den Ferritkern (6) wirkte, der sich im inhomogenen Teil des Feldes der Spule (11) befand. Der Kern hing in dem unten zugeblasenen Glasrohr (7). Die Kompensationsspule war von einer Abschirmung aus 0,5 mm starkem Eisenblech umgeben. Durch diese wurde

* Diese Apparatur wurde von Herrn Dipl.-Phys. CH. HUBER gebaut.

⁶ LANGER, L.M., u. F.R. SCOTT: Rev. Sci. Instrum. **21**, 522 (1950).

das Streufeld des Magneten genügend abgeschirmt, die Inhomogenität des Feldes am Ende der Spule aber noch nicht wesentlich geschwächt. Um jede permanente Magnetisierung des magnetisch weichen Ferrits zu verhindern, wurde zur Kompensation Wechselstrom verwendet. Die Netzspannung wurde mit einem Stabilisator konstant gehalten. Der Strom in der Kompensationsspule wurde mit einem Multavi 5 gemessen. Dieser Strom war also ein Maß für die Kraft auf die Probe.

Bei der Justierung der Spule wurde diese so angebracht, daß der Ferritkern in der Spulennachse hing. Die günstigste Höhenstellung der Spule bezüglich des Kerns wurde experimentell bestimmt. Dazu wurden die Ströme ermittelt, die zur Kompensation eines Gewichtes bei verschiedenen Höhenstellungen h notwendig waren, und so die günstigste Stellung des Ferritkerns ermittelt, in der eine kleine Verschiebung die geringste Kraftänderung hervorrief. Die Wage wurde bei jeder Messung möglichst genau auf den Nullpunkt gebracht, die Abweichung der Höhe h betrug dabei nicht mehr als 0,4 mm, was einem maximalen Fehler in der Kraftmessung von weniger als 0,5 % entsprach.

Durch Auflegen von Gewichten auf das Schälchen (3) wurde die Kompensationseinrichtung geeicht. Es ergab sich ein streng linearer Zusammenhang zwischen dem Quadrat der Stromstärke und der Kraft auf den Ferritkern.

5. Der Kryostat. Die tiefen Temperaturen wurden erhalten durch die Verwendung von Bädern von verflüssigten Gasen, die unter einem bekannten, konstanten Druck siedeten. Für Temperaturen unterhalb der Siedetemperatur bei Atmosphärendruck wurde der Dampfdruck durch Abpumpen herabgesetzt. Der Dampfdruck wurde mit einem Quecksilbermanometer gemessen. Die ihm entsprechende Temperatur wurde den Dampfdruckkurven entnommen. Für flüssiges Helium wurde die Dampfdruckkurve von 1948⁷ verwendet, für flüssigen Wasserstoff und flüssigen Stickstoff wurden die Werte von HENNING⁸ benutzt.

In Fig. 1 sind die beiden Dewargefäße (16) und (18) angedeutet. Das innere Gefäß war aus Thüringerglas, da nur dieses für He dicht ist. Die Versilberung war mit einem Sichtstreifen versehen. Das äußere Gefäß war unversilbert und aus Jenaerglas. Für Temperaturen im Bereich des flüssigen Heliums wurde das innere mit flüssigem Helium, das äußere mit flüssiger Luft gefüllt. Für Wasserstoff- oder Stickstofftemperaturen wurde nur das innere Gefäß mit dem flüssigen Gas gefüllt.

Das innere Gefäß war mit einem Deckel (17) vakuumdicht verschlossen. Auf dem Rand des Gefäßes lagen einige Ringe aus Paragummi, die gut mit Vakuumfett eingerieben waren. Auf diese wurde der Deckel durch 4 Federn gedrückt. Damit die Dichtung vakuumdicht

⁷ DIJK, H. VAN, u. D. SHOENBERG: *Nature*, Lond. **164**, 151 (1949).

⁸ HENNING, F.: *Wärmetechnische Richtwerte*, Berlin 1938.

war, mußten die Gummiringe natürlich warm bleiben. Im Deckel waren 4 Neusilberrohre eingelötet, eines für die Durchführung des Glasrohres (5), in dem die Probe hing, ein zweites für das Vakuummantelrohr des Hebers. Am dritten war die Abgasleitung angeschlossen. Das vierte war mit dem Quecksilbermanometer verbunden.

Für die Temperaturen zwischen 90 und 270° K wurde ein anderer Kryostat verwendet. Als Bad wurde Methylalkohol oder flüssiges Propan verwendet. Im Bad befand sich eine Kühlschlange, durch die kaltes Stickstoffgas geleitet wurde, das in einem Dewargefäß verdampft wurde. Durch Regelung der durchströmenden Gasmenge wurde die Temperatur eingestellt und konstant gehalten. Die Messung der Temperatur erfolgte hier mit einem Kupfer-Konstantan-Thermoelement*.

6. Die Vakuumeinrichtung. Da es notwendig war, den Raum zu evakuieren, in dem die Probe hing, befand sich die Waage in einem Gehäuse. Es bestand aus der Grundplatte (9), einem Messingrohr (8) und einem Deckel (10). Die Dichtung sowohl zwischen Grundplatte und Zylinder, als auch zwischen Zylinder und Deckel erfolgte durch Gummiringe. Der auf dem Deckel lastende Druck von etwa 150 kg genügte, um die Verbindung vakuumdicht zu machen. An die Grundplatte (9) des Waagegehäuses waren angeschraubt: ein Flansch (15), in dem das Glasrohr (7) für den Ferritkern eingekittet war, ein Flansch für den Anschluß an die Vakuumpumpe, ein Flansch mit der Wellendurchführung für die Arretierung der Waage, ein Flansch mit der Welle für die Aushäng- und Aufspulvorrichtung, ferner die Vakuumschleuse (13). In dieser war ein unten zugeblasenes Glasrohr eingekittet, in dem die Probe hing. Jeder Flansch war mit Gummiringen abgedichtet, die Wellendurchführungen durch zwei Simmerringe, zwischen denen sich eine Mischung aus Hochvakuumfett und Hochvakuumöl befand. Aus dem Topf war eine Welle herausgeführt. Über diese konnte die Torsionsvorspannung des Torsionsfadens und damit der Nullpunkt der Waage von außen verändert werden. Auch hier erfolgte die Vakuumdichtung mit Simmerringen. In den Topf war auch das Fenster für den Lichtzeiger eingekittet. Im Deckel des Waagegehäuses (10) war eine 10 mm starke Kristallglasplatte mit 120 mm Durchmesser eingekittet, damit man den Vorgang des Probenabhängens beobachten konnte.

Evakuiert wurde das Gehäuse mit einer Leybold-Pumpe D2 und mit einer Quecksilberdiffusionspumpe Hg 12. Bei laufender Diffusionspumpe wurde ein Druck von $1 \cdot 10^{-5}$ Torr erreicht. Der Druck wurde mit einem Penning-Manometer gemessen.

7. Die Vorrichtung zum Auswechseln der Probe. Wollte man eine Probe auswechseln, so mußte dazu das Waagegehäuse belüftet werden.

* Dieser Kryostat wurde von Herrn cand. phys. W. MEER gebaut.

Wäre dabei der Kryostat mit flüssigem Helium oder Wasserstoff gefüllt, so würde im Rohr (5) Luft ausfrieren. Um dies zu vermeiden, mußte man die Dewargefäße zuvor auf Zimmertemperatur bringen, was einen großen unnützen Verbrauch an Kühlmittel zur Folge hätte. Deshalb wurde auf der Grundplatte des Waagegehäuses eine Vorrichtung (12) angebracht, mit der die Probe im Waagegehäuse von außen von der arretierten Waage abgehängt und hochgezogen wurde. Wurde darnach das Ventil (14) geschlossen, so konnte das Waagegehäuse geöffnet und die Probe ausgewechselt werden. Danach wurde der Topf wieder evakuiert, das Ventil (14) geöffnet und die Probe heruntergelassen und eingehängt. Mittels eines Mikroskops wurde kontrolliert, ob die Probe immer an derselben Stelle des Feldes saß.

III. Die Messung

1. Durchführung der Messung. Von den Metallen wurde eine Menge von 0,2 bis 1 g in ein kleines Röhrchen aus Covar-Glas von SCHOTT eingefüllt. Das Gläschen wurde nach Evakuierung mit 350 Torr He gefüllt und abgeschmolzen. Nachdem es an die Waage gehängt und das Waagegehäuse aufgesetzt war, wurde die ganze Wägeeinrichtung evakuiert und zum Schluß mit etwa 1 Torr He gefüllt, damit die sonst im Vakuum hängende Probe schneller die Temperatur des Bades annahm. Nach wenigen Minuten änderte sich die Kraft auf die Probe nicht mehr, doch wurde bis zum Beginn der eigentlichen Messung mindestens 10 min gewartet. Die auf die Probe wirkende Kraft wurde bei 12 verschiedenen Feldstärken zwischen 45 und 3000 Oe bei dreimaliger Wiederholung jeder Meßreihe gemessen. Zum Schluß wurde noch das leere Gläschen gemessen und die auf dieses wirkende Kraft in Abzug gebracht. Um sie möglichst klein zu machen, wurde Covar-Glas gewählt, das sehr einheitlich erst bei $T < 20^\circ \text{K}$ paramagnetisch wird. Bei 4°K betrug die Kraft auf das Gläschen nur wenige Promille derjenigen, die auf eine paramagnetische Probe wirkt.

2. Auswertung der Messungen. Die Kräfte wurden gegen das Quadrat der Feldstärke in der Mitte der Probe aufgetragen. Wie Gl. (5) zeigt, sind die Kräfte proportional dem Quadrat von H , vorausgesetzt, daß die Magnetfelder ähnlich sind, was bei der kleinen Magnetisierung immer erfüllt ist. Ist die Abhängigkeit von H^2 linear, so heißt dies, daß die Suszeptibilität nicht vom Magnetfeld abhängt und man kann die Gl. (5) zur Errechnung der Suszeptibilität verwenden. Durch eine Korrektur wurde der Diamagnetismus der Metallionen berücksichtigt. Dazu wurden die Werte von KLEMM⁹ benützt. Nicht berücksichtigt

⁹ Vgl. Landolt-Börnstein, Bd. 1, Teil 1, S. 398. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1950.

wurde der Magnetismus der Leitungselektronen, weil er noch kleiner ist und in die Unsicherheit der Korrektur für den Diamagnetismus der Ionen fällt. Dieser so korrigierte Wert für χ ist in den Diagrammen angegeben. Ergab sich eine lineare Abhängigkeit zwischen $1/\chi$ und T , so galt das Curie- oder das Curie-Weißsche Gesetz. In diesem Fall wurde mittels der Methode der kleinsten Quadrate die Curie-Konstante C und die charakteristische Temperatur Θ errechnet. Aus C wurde mit Gl. (2) das magnetische Moment p bestimmt.

War die Abhängigkeit der Kraft vom Feldstärkenquadrat nicht linear, war also die Suszeptibilität von der Feldstärke abhängig, so wurde mit Gl. (8) das magnetische Moment pro g bestimmt. Dieses ist in einigen der folgenden Kurven in Abhängigkeit vom Feld H' angegeben. H' wurde bei Berücksichtigung der entmagnetisierenden Wirkung der Enden gemäß

$$H' = H - N\sigma \quad (\sigma \text{ Magnetisierung pro cm}^3) \quad (9)$$

erhalten. N ist der Entmagnetisierungsfaktor. Der Unterschied zwischen H und H' ist im Gegensatz zur Eisenreihe klein, da σ viel kleiner ist. Es wurde der für Zylinderproben mit entsprechender Dimension geltende Wert von N eingesetzt. In einigen Diagrammen ist auch die Anfangsuszeptibilität aufgeführt. Diese ergibt sich aus $\sigma_g = \chi_g H$ bei Extrapolation für $H \rightarrow 0$.

Die Meßgenauigkeit ist bei den verschiedenen Stoffen sehr verschieden, sie ist dort jeweils angegeben, im allgemeinen betrug der Fehler bei der Magnetonzahl 2 bis 3%.

IV. Die Meßergebnisse

1. Cer. Das Cer-Metall wurde von A.D. MACKAY, Inc., New York in kompakter Form geliefert. Die angegebene Reinheit betrug 98,5%.

Bei 293° K ergab sich für die Atomsuszeptibilität $\chi = 2400 \cdot 10^{-6}$ und bei 273° K $\chi = 2590 \cdot 10^{-6}$. Dies stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit früheren Messungen überein^{10, 11, 12}. Benützt man das Curie-Weißsche Gesetz, so ergab sich das magnetische Moment zu $p = (2,60 \pm 0,08)$ Bohrsche Magnetonen. Der theoretische Wert bei Zimmertemperatur ist 2,56 B.M.¹³. Im Temperaturbereich des flüssigen Stickstoffs, der bei früheren Messungen nicht erfaßt wurde, ergab sich eine Feldstärkenabhängigkeit der Suszeptibilität. Es wurde daher für $65^\circ \text{ K} < T < 77^\circ \text{ K}$

¹⁰ KLEMM, W., u. H. BOMMER: Z. anorg. allg. Chem. **231**, 138 (1937).

¹¹ TROMBE, F., u. M. FOEX: Ann. Chim. **19**, 417 (1944).

¹² HENRY LA BLANCHETAI, CH.: J. Rech. Cent. Nat. Rech. Sci. **6**, 103 (1954).

¹³ Vgl. Landolt-Börnstein, Bd. 1, Teil 1, S. 392. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1950.

das magnetische Moment pro g für die einzelnen Feldstärken aufgetragen. Aus dieser Figur wurde die Neigung der Isothermen im Nullpunkt entnommen und daraus die Anfangssuszeptibilität errechnet. Es zeigte sich, daß das magnetische Moment in diesem Temperaturbereich bei jeder Feldstärke mit abnehmender Temperatur kleiner wird. Entsprechendes zeigt Fig. 2 für die Anfangssuszeptibilität. Das Cer-Metall war also im Temperaturbereich des flüssigen Stickstoffs antiferromagnetisch. Für $1,40^\circ \text{K} < T < 4,16^\circ \text{K}$ und $14,2^\circ \text{K} < T < 20,2^\circ \text{K}$ war das Cer aber wieder paramagnetisch. Die Neigung des fast geraden

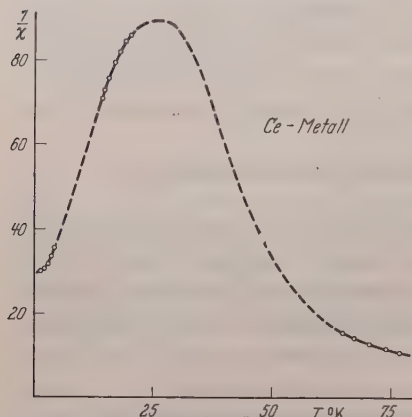


Fig. 2. Temperaturgang von $1/\chi$ für Ce zwischen 15 und 75°K (im antiferromagnetischen Bereich ist χ die Anfangssuszeptibilität)

Stücks zwischen 18 und $3,5^\circ \text{K}$ ergab ein magnetisches Moment von $p = (1,56 \pm 0,05)$ B.M., anstatt des theoretischen Werts von 2,56 B.M.

Der im Temperaturbereich des flüssigen Stickstoffs auftretendes Antiferromagnetismus dürfte damit im Zusammenhang stehen, daß die Kristallstruktur des Cer-Metalls sich ändert, wenn es unter 85°K abgekühlt wird. Bei Zimmertemperatur wurde das α -Cer mit kubisch flächenzentriertem Gitter gefunden^{10, 14}, ferner in Form der hexagonalen dichtesten Kugelpackung das β -Cer¹⁵. Unterhalb 85°K wandelt sich das Cer mehr oder weniger

vollständig in eine kubisch flächenzentrierte Form um, mit einer Gitterkonstanten die 6% kleiner ist, als die der kubisch flächenzentrierten Form bei Zimmertemperatur¹⁶. Das gleiche Gitter wurde bei höheren Temperaturen unter einem Druck von 12000 Atm gefunden¹⁷. Daß das Cer-Metall im Temperaturbereich des flüssigen Wasserstoffs und des flüssigen Heliums wieder paramagnetisch ist, ist insofern überraschend, als dies bedeuten würde, daß mit sinkender Temperatur der magnetische Anteil der Entropie wieder zunehmen würde. Es ist demnach zu vermuten, daß zwischen 65 und 20°K ein weiterer Umwandlungspunkt liegt.

Der niedrige Wert von p bei Heliumtemperaturen weist auf die Anwesenheit von diamagnetischen Ce^{4+} -Ionen hin. Dieser Verdacht wird

¹⁴ SPEDDING, F. H., A. H. DAANE u. K. W. HERMANN: Acta crystallogr. **9**, 559 (1956).

¹⁵ QUILL, L. L.: Z. anorg. allg. Chem. **208**, 273 (1932).

¹⁶ SCHUCH, A. F., u. J. H. STURDIVANT: J. Chem. Phys. **18**, 145 (1950).

¹⁷ LAWSON, A. W., u. T. Y. TANG: Phys. Rev. **76**, 301 (1949).

bestärkt durch die Kurve der Atomvolumina der seltenen Erdmetalle¹⁰. In dieser Kurve zeigt Cer eine Abweichung im Sinne eines kleinen Anteils an vierwertigen Ionen.

2. Praseodym. Das Praseodym-Metall konnte von A. D. MACKAY, Inc. New York nur in Pulverform geliefert werden. Eine Röntgenuntersuchung* nach Abschluß der Messungen ergab einige Debye-Linien vom Oxyd, das entsprechend der Linienintensität in einer Konzentration von wenigen Prozents vorhanden war.

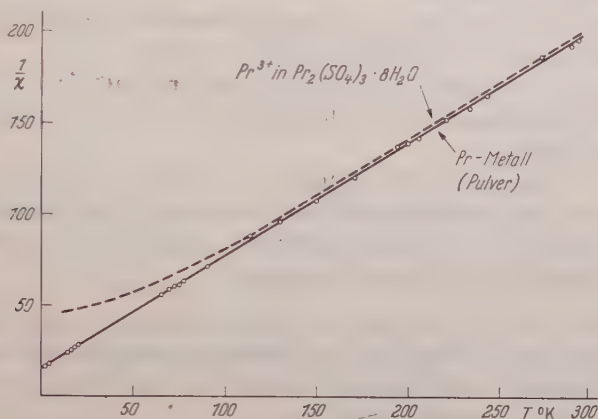


Fig. 3. Temperaturgang von $1/\chi$ für Pr-Salz und Pr-Metall (Pulver)

Es wurden zwei Proben mit gleichem Ergebnis untersucht. Im ganzen Meßbereich von 1,5 bis 290° K war die Suszeptibilität unabhängig von der Feldstärke.

Wie Fig. 3 zeigt, ist die Abhängigkeit der reziproken Suszeptibilität von der Temperatur bis zur tiefsten Meßtemperatur linear. Praseodym-Metall gehorcht also dem Curie-Weißschen Gesetz. Die charakteristische Temperatur ist $\Theta = -22^\circ \text{K}$. Der Neigung der Geraden im $1/\chi - T$ -Diagramm entspricht das magnetische Moment: $p = (3,54 \pm 0,10) \text{ B.M.}$ Die Übereinstimmung mit dem theoretischen Wert für den 3H_4 -Term des freien Pr^{3+} -Ions $p = 3,58 \text{ B.M.}^{13}$ ist innerhalb der Fehlergrenzen sehr gut. Es ist also der Schluß berechtigt, daß das Gitter des Praseodym-Metalls aus Pr^{3+} -Ionen aufgebaut ist.

In Fig. 3 ist die in Leiden¹⁸ für das Pr^{3+} -Ion im $\text{Pr}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8 \text{H}_2\text{O}$ gefundene Kurve miteingetragen. Für $T > 120^\circ \text{K}$ verlaufen die beiden

* Herrn cand. phys. H. PEISL habe ich für die Röntgenuntersuchungen zu danken.

¹⁸ GORTER, C. J., u. W. J. DE HAAS: Comm. Kamerlingh Onnes Lab. 218b, Leiden 1931.

Geraden parallel, es entspricht ihnen also das gleiche magnetische Moment. Für $T < 120^\circ \text{ K}$ weicht die Kurve für das Salz vom Curie-Weißschen Gesetz ab. Dies ist auf die Termaufspaltung durch das Kristallfeld zurückzuführen. Beim Metall macht sich diese nicht bemerkbar.

Das Fehlen von Wechselwirkungseffekten kann durch die Pulverform der Probe und durch die Anwesenheit von Sauerstoff verursacht sein.

Sobald kompaktes Material zur Verfügung steht, sollen die Messungen mit ihm wiederholt werden.

OWEN¹⁹ untersuchte das Praseodym zwischen 123 und 1073° K . Seine Werte waren $p = 2,64 \text{ B.M.}$ und $\Theta = +40^\circ \text{ K}$.

KLEMM und BOMMER²⁰ fanden zwischen 90 und 293° K : $p = 3,49 \text{ B.M.}$ und $\Theta = 0$. Das magnetische Moment ist in Übereinstimmung mit unseren Messungen.

HENRY LA BLANCHETAIS²¹ untersuchte das Metall zwischen 77 und 1068° K . Für den Temperaturbereich zwischen 77 und 480° K wurde $\Theta = -21^\circ \text{ K}$ und $p = 3,56 \text{ B.M.}$ gefunden. Dies steht in sehr guter Übereinstimmung mit unseren Messungen.

3. Neodym. Das zur Messung verwendete Neodym-Metall wurde von A.D. MACKAY, Inc., New York in Stangen bezogen. Gemäß einer spektroskopischen Untersuchung enthielt es als Verunreinigungen $0,05\% \text{ Mg}$, $0,01\% \text{ Fe}$ und $0,001\% \text{ Al}$.

Fig. 4 und 5 zeigen, daß das Neodym-Metall für $T > 14^\circ \text{ K}$ dem Curie-Weißschen Gesetz gehorcht, mit $p = (3,58 \pm 0,10) \text{ B.M.}$ und $\Theta = -0,16^\circ \text{ K}$. Fig. 5 läßt erkennen, daß beim Neodym für $1,39^\circ \text{ K} < T < 4,17^\circ \text{ K}$ die Suszeptibilität mit abnehmender Temperatur abnimmt. Es muß also zwischen dem Temperaturbereich des flüssigen Heliums und des flüssigen Wasserstoffs die Suszeptibilität ein Maximum haben. Durch Extrapolation findet man es bei $6,5^\circ \text{ K}$. Neodym-Metall ist also bei Heliumtemperaturen antiferromagnetisch. Eine Feldstärkenabhängigkeit der Suszeptibilität wurde bis zum maximalen Feld von 3000 Oe nicht festgestellt.

In Fig. 4 ist zum Vergleich die von FRITSCH²² gemessene Kurve für das Nd-Ion im $\text{Zn}_3\text{Nd}_2(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24 \text{ H}_2\text{O}$ gestrichelt miteingetragen. Für $T > 120^\circ \text{ K}$ verlaufen die beiden Geraden parallel, d.h. es entspricht ihnen das gleiche magnetische Moment. Dieses ist wiederum mit dem theoretischen Wert $p = 3,62 \text{ B.M.}$ ¹³ für den $^4J_{9/2}$ Grundzustand des freien Nd^{3+} -Ions innerhalb der Fehlergrenzen in guter Übereinstimmung. Für

¹⁹ OWEN, M.: Ann. Phys. **37**, 657 (1912).

²⁰ KLEMM, W., u. H. BOMMER: Z. anorg. allg. Chem. **241**, 264 (1939).

²¹ HENRY LA BLANCHETAIS, CH.: C. R. Acad. Sci., Paris **234**, 1353 (1952).

²² FRITSCH, H.: Ann. Phys. **38**, 556 (1940).

$T < 120^\circ \text{ K}$ weicht die $\frac{1}{\chi} - T$ -Kurve für das Salz vom Curie-Weißschen Gesetz ab. Dies ist auf die Kristallfeldaufspaltung zurückzuführen. Eine solche Abweichung tritt beim Metall nicht in Erscheinung.

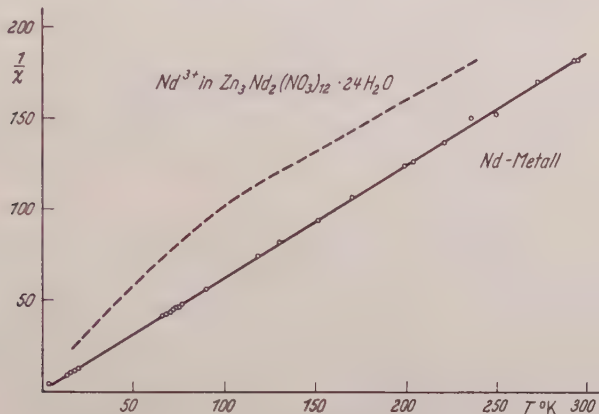


Fig. 4. Temperaturgang von $1/\chi$ für Nd-Salz und Nd-Metall zwischen 1,5 und 300° K

OWEN¹⁹ untersuchte das Metall im Bereich 123 bis 1073° K . Er fand zwischen 123 und 473° K : $p = 3,45 \text{ B.M.}$ und nahezu das gleiche Θ wie hier.

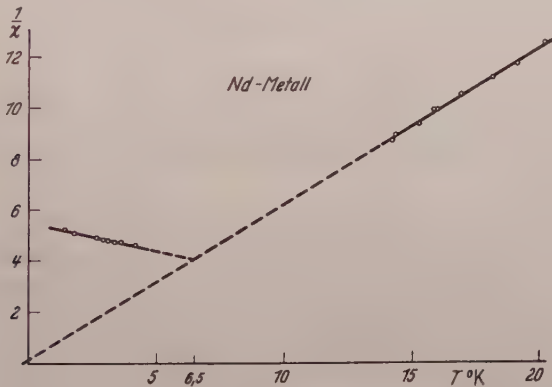


Fig. 5. Temperaturgang von $1/\chi$ für Nd-Metall zwischen 1,5 und 20° K

TROMBE²³ fand eine Änderung der Neigung der $\frac{1}{\chi} - T$ -Kurve bei 110° K . Für $T > 110^\circ \text{ K}$ fand er $p = 3,59 \text{ B.M.}$ und $\Theta = 10^\circ \text{ K}$, für $T < 110^\circ \text{ K}$ nur $p = 2,08 \text{ B.M.}$ und $\Theta = 70^\circ \text{ K}$. Letzteres ist in Widerspruch zu vorliegenden Messungen.

²³ TROMBE, F.: Ann. Physique 7, 385 (1937).

KLEMM und BOMMER²⁰ fanden zwischen 90 und 292° K das Curie-Gesetz mit $p = 3,65$ B.M.

Von ELLIOTT, LEGVOLD und SPEDDING²⁴ wurde die Suszeptibilität zwischen 20 und 300° K gemessen. Bei 145° K fanden sie eine schwache Neigungsänderung der $\frac{1}{\chi} - T$ -Kurve: für $T > 145^\circ$ K $p = 3,65$ B.M. und $\Theta = -16^\circ$ K, zwischen 145 und 32° K $p = 3,35$ B.M. und $\Theta = +1^\circ$ K. Bei 20° K war der χ -Wert zu groß und in größeren Feldern feldstärkenabhängig. Diese Anomalie wurde in unseren Messungen bei den kleineren Feldern nicht gefunden. Eine Neigungsänderung der $\frac{1}{\chi} - T$ -Kurve bei 145° K liegt innerhalb der Fehlergrenzen.

SPEDDING²⁵ untersuchte bei 4,2° K die Magnetisierung von Nd-Metall mit Feldstärken bis 18000 Oe. Bei Feldern > 5000 Oe fand er eine Feldabhängigkeit des magnetischen Moments, wie sie im antiferromagnetischen Temperaturbereich gefunden wird. Dies kann als eine Bestätigung des hier aus dem Temperaturgang der Suszeptibilität gefundenen antiferromagnetischen Verhaltens von Nd-Metall im Temperaturbereich des flüssigen Heliums gewertet werden.

BATES, LEACH, LOASBY und STEVENS²⁶ führten Messungen im hier nicht untersuchten Temperaturbereich zwischen 290 und 1000° K durch. Sie fanden: $p = 3,72$ B.M. und $\Theta = -15^\circ$ K.

PARKINSON, SIMON und SPEDDING²⁷ bestimmten die Atomwärme von Nd-Metall. Sie fanden eine Anomalie bei 7,5° K. Dies stimmt gut mit dem hier gefundenen Neel-Punkt bei 6,5° K überein.

4. Samarium. Das Samarium-Metall wurde von A.D. MACKAY, Inc., New York ebenfalls als Pulver mit einer Reinheit von 99,5 % geliefert. Es wurde unter Luftabschluß verschickt und immer unter Stickstoffatmosphäre aufbewahrt.

Es wurden zwei Proben mit gleichem Ergebnis untersucht. Die für die Suszeptibilität gefundenen Werte waren feldstärkenunabhängig. In Fig. 6 ist die reziproke Atomsuszeptibilität gegen die Temperatur aufgetragen, zusammen mit der von WIERSMA und SCHULTZ²⁸ für das Sm^{3+} -Ion im Sm_2O_3 und mit der von FREED²⁹ und SPEDDING³⁰ für das

²⁴ ELLIOTT, J.F., S. LEGVOLD u. F.H. SPEDDING: Phys. Rev. **94**, 50 (1954).

²⁵ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 379. Amsterdam 1957.

²⁶ BATES, L.F., S. J. LEACH, R.G. LOASBY u. K.W.H. STEVENS: Proc. Phys. Soc. B **68**, 181 (1955).

²⁷ PARKINSON, D.H., F.E. SIMON u. F.H. SPEDDING: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **207**, 137 (1951).

²⁸ WIERSMA, E.C., u. B.H. SCHULTZ: Physica, Eindhoven **13**, 171 (1933).

²⁹ FREED, S.: J. Amer. Chem. Soc. **52**, 2702 (1930).

³⁰ SPEDDING, F.H.: J. Amer. Chem. Soc. **54**, 2593 (1932).

Sm^{3+} -Ion im $\text{Sm}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8 \text{H}_2\text{O}$ gemessenen Kurve. Die Messungen von WIERSMA und SCHULTZ erstreckten sich herab bis zu $14,2^\circ \text{K}$. Das Oxyd wurde auch in dieser Arbeit untersucht, und zwar im Temperaturbereich des flüssigen Heliums und des flüssigen Wasserstoffs. Die gefundenen Werte sind in Fig. 6 mitaufgetragen. Die Werte im Wasserstoffbereich stimmen gut mit den in Leiden gemessenen überein.

Weder das Oxyd oder Salz, noch das Metall folgen einem Curie-Weißschen Gesetz. Dieses Verhalten ist darauf zurückzuführen, daß beim Ion der Abstand zwischen Grundzustand und nächstem Term bei

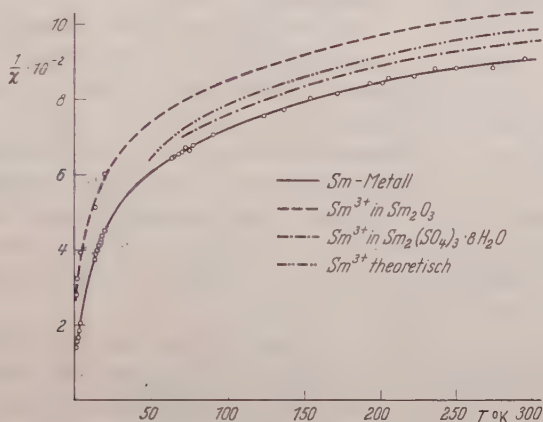


Fig. 6. Temperaturgang von $1/\chi$ für Sm-Salze und Sm-Metall (Pulver)

Zimmertemperatur vergleichbar mit kT ist³¹, d.h. erst bei ganz tiefen Temperaturen ist nur der Grundzustand besetzt. Bei den Temperaturen sind aber die durch die Kristallfeldaufspaltung bedingten Unterniveaus nicht mehr gleich besetzt.

Aus Fig. 6 ist ersichtlich, daß die Kurve für das Metall parallel den experimentellen Kurven für das Sm-Ion verläuft. Bei Gültigkeit eines Curie-Weißschen Gesetzes bedeutet eine Parallelverschiebung im $\frac{1}{\chi} - T$ -Diagramm eine Veränderung der charakteristischen Temperatur, dagegen bleibt das aus der Neigung sich ergebende magnetische Moment gleich. Beim Samarium läßt sich diese Überlegung übertragen auf die an die $\frac{1}{\chi} - T$ -Kurven gelegten Tangenten. Es ergibt sich also für das Samarium-Metall bei jeder Temperatur das gleiche magnetische Moment wie für das Sm^{3+} -Ion. Somit ist der Schluß berechtigt, daß das Metallgitter aus Sm^{3+} -Ionen aufgebaut ist, ferner daß nicht nur die

³¹ VLECK, J.H. VAN: Electric and Magnetic Susceptibilities, S. 246. Oxford 1932.

Grundzustände im Salz und Metall gleich sind, sondern auch die angeregten Zustände.

In Fig. 6 ist auch noch eine theoretische Kurve für das freie Sm^{3+} -Ion eingetragen. Sie wurde dem Buch von SELWOOD³² entnommen und wurde von VAN VLECK unter Zugrundelegung der experimentell bestimmten Termabstände errechnet. Die Kurve für das Sm^{3+} -Ion im Metall verläuft bei $T > 50^\circ \text{ K}$ parallel zu der theoretischen, d.h. es besteht hier eine gute Übereinstimmung mit dem theoretischen magnetischen Moment. Bei tieferen Temperaturen treten aber größere Abweichungen auf. Bei 0° K würde der Grundzustand $(^6H_{5/2})p = 0,84 \text{ B.M.}^{13}$ ergeben, während fürs Metall im Temperaturbereich des flüssigen Heliums $p = 0,65 \text{ B.M.}$ gefunden wurde. Für das Oxyd würde sich ein noch geringerer Wert ergeben. Vielleicht ist diese Abweichung auf die Kristallfeldaufspaltung zurückzuführen, die dann auch beim Metall in geringem Maß vorhanden wäre. Wahrscheinlicher ist hier O_2 -Gehalt als Ursache.

Das Samarium-Metall wurde bisher von KLEMM und BOMMER¹⁰ untersucht. Sie fanden bei 90° K eine Feldstärkenabhängigkeit der Suszeptibilität. Ihre Werte liegen sehr viel höher als die hier gefundenen. So geben sie bei Zimmertemperatur $\chi = 1820 \cdot 10^{-6}$ an, während hier $1110 \cdot 10^{-6}$ gefunden wurde.

Auch der bei SPEDDING³³ für Zimmertemperatur angegebene Wert: $\chi = 1320 \cdot 10^{-6}$ liegt höher als unserer. Doch ist der Unterschied bezüglich des Moments nicht so groß, weil p proportional $1/\chi$ ist.

5. Terbium. Das Terbium-Metall wurde von F.H. SPEDDING in kompakter Form für die Messungen zur Verfügung gestellt.

Die Kräfte, die bei der Messung auf die Terbium-Probe wirkten, waren so groß, daß sie nur bis zur Feldstärke von 2300 Oe kompensiert werden konnten. Bei allen Meßtemperaturen traten Sättigungserscheinungen auf. Fig. 7 zeigt, daß innerhalb der großen Streuung der Meßwerte die Magnetisierung praktisch temperaturunabhängig, aber nicht feldstärkenproportional ist.

Die Temperaturabhängigkeit wurde auch schon von SPEDDING³⁴ bei einem Feld von 12000 Oe zwischen 70° K und seiner kleinsten Meßtemperatur von 30° K festgestellt. SPEDDING gibt als ferromagnetischen Curie-Temperatur 230° K an, KLEMM und BOMMER¹⁰ fanden 205° K . Wie Fig. 7 weiterhin zeigt, ist man aber noch weit von der Sättigung entfernt. Die Anfangssuszeptibilität beträgt $\chi_g = 3,2 \cdot 10^{-2}$. Bei 12000 Oe ist σ_g/H im temperaturunabhängigen Bereich auf $1,4 \cdot 10^{-2}$

³² SELWOOD, P.: Magnetochemistry, S. 84. New York 1943.

³³ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 380. Amsterdam 1957.

³⁴ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 382. Amsterdam 1957.

gesunken³⁴. Bei den Elementen der Eisengruppe wird die Sättigungsmagnetisierung bei etwa $0,2 T_{\text{CURIE}}$ erreicht³⁵. In Analogie dazu ist mit dem von SPEDDING angegebenen Curie-Punkt eine Temperaturunabhängigkeit bei $T < 50^\circ \text{K}$ zu erwarten, was auch der Fall ist. Der Unterschied ist aber der, daß bei 12000 Oe erst 60% der Sättigung erreicht ist,

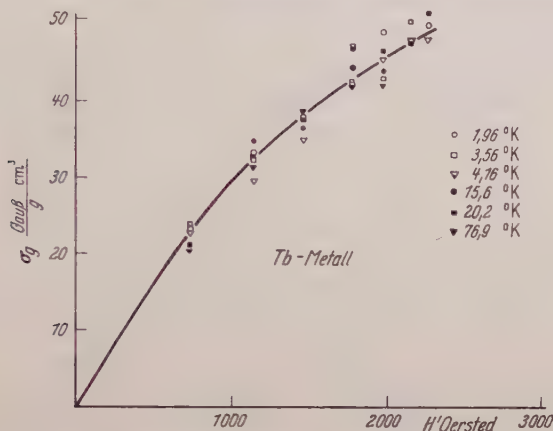


Fig. 7. Feldstärkenabhängigkeit der Magnetisierung σ_g für Tb

während z.B. bei Ni infolge der viel stärkeren Kopplung schon 5000 Oe zur Erreichung der Sättigung hinreichend sind.

6. Dysprosium. Dieses Metall wurde von A.D. MACKAY, Inc., New York in Pulverform bezogen. Eine Röntgenuntersuchung ergab keine Debye-Linien des Oxyds. Es wurden zwei Proben mit gleichem Ergebnis untersucht.

Aus Fig. 8 sieht man, daß die Proben dem Curie-Weißschen Gesetz mit $\Theta = -2,3^\circ \text{K}$ und $p = (10,45 \pm 0,30) \text{ B.M.}$ folgten. Der theoretische Wert für das Dy^{3+} -Ion beträgt 10,65 B.M.³⁶. In Fig. 8 ist auch die für das Dy^{3+} -Ion im Dy_2O_3 gemessene Curie-Weißsche Gerade mit $p = 10,2 \text{ B.M.}$ aufgetragen^{37, 38}.

KLEMM und BOMMER³⁹ untersuchten das Metall zwischen 90 und 508°K . Sie fanden bereits bei 273°K eine Feldstärkenabhängigkeit der Suszeptibilität, ferner $p = 10,9 \text{ B.M.}$ und $\Theta = 150^\circ \text{K}$. Für $T < 150^\circ \text{K}$

³⁵ BECKER, R., u. W. DÖRING: Ferromagnetismus, S. 25. Berlin 1939.

³⁶ Vgl. Landolt-Börnstein, Bd. 1, Teil 1, S. 392. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1950.

³⁷ KAMERLINGH ONNES, H., u. A. PERRIER: Comm. Kamerlingh Onnes Lab. 122a, Leiden 1911.

³⁸ KAMERLINGH ONNES, H., u. E. OOSTERHUIS: Comm. Kamerlingh Onnes Lab. 129b, Leiden 1912.

³⁹ KLEMM, W., u. H. BOMMER: Z. anorg. allg. Chem. **231**, 138 (1937).

ergab sich keine vollständige Ausbildung des Ferromagnetismus, sondern nur Übergangszustände zwischen paramagnetischem und ferromagnetischem Verhalten.

TROMBE^{40, 41, 42} fand bei 175° K einen Neel-Punkt. Unterhalb dieser Temperatur war die Suszeptibilität feldstärkenabhängig. Bei 85° K fand er einen Übergang zum Ferromagnetismus.

ELLIOTT, LEGVOLD und SPEDDING⁴³ untersuchten das Dysprosium im Temperaturbereich von 4,2 bis 202° K mit Feldern von 4000 bis 18000 Oe. Sie fanden bei 175° K einen Neel-Punkt und bei 92° K einen

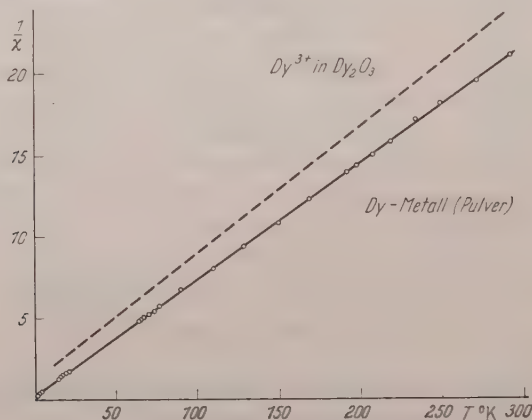


Fig. 8. Temperaturgang von $1/\chi$ für Dy_2O_3 und Dy-Metall (Pulver)

Curie-Punkt. Oberhalb 175° K gilt das Curie-Weißsche Gesetz mit $p=10,2$ B.M. und $\Theta=154^\circ$ K. Hier war die Suszeptibilität feldunabhängig. Für $T<175^\circ$ K wurde bei hohen Feldstärken eine Abhängigkeit gefunden. Unterhalb 92° K wurden alle Anzeichen von Ferromagnetismus wie spontane Magnetisierung, Sättigungs- und Hysterese-Effekte festgestellt. Das Fehlen eines solchen Übergangs in den vorliegenden Messungen muß durch die Pulverform verursacht sein.

7. Holmium. Dieses Metall wurde in kompakter Form von F.H. SPEDDING ausgeliehen.

Im Temperaturbereich des flüssigen Stickstoffs war die Suszeptibilität feldstärkenunabhängig. Bei tieferen Temperaturen traten Sättigungserscheinungen auf. Da die magnetischen Momente, wie Fig. 9 zeigt, mit abnehmender Temperatur größer werden, ist das Holmium-Metall für $T<20^\circ$ K ferromagnetisch. Trägt man das magnetische

⁴⁰ TROMBE, F.: C. R. Acad. Sci., Paris **221**, 19 (1945).

⁴¹ TROMBE, F.: J. Phys. Radium **12**, 222 (1951).

⁴² TROMBE, F.: C. R. Acad. Sci., Paris **236**, 591 (1953).

⁴³ ELLIOT, J.F., S. LEGVOLD u. F.H. SPEDDING: Phys. Rev. **94**, 1143 (1954).

Moment gegen die Temperatur auf, so ergibt sich ein Wendepunkt der Kurven bei etwa 20° K . Dieser Punkt entspricht ungefähr dem Curie-Punkt.

SPEDDING⁴⁴ untersuchte das Holmium für $T > 4^\circ \text{ K}$. Er fand bei ungefähr 20° K den Curie-Punkt und bei 132° K einen Neel-Punkt.

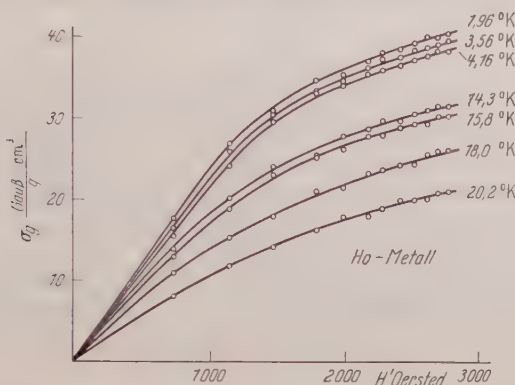


Fig. 9. Feldstärkenabhängigkeit der Magnetisierung σ_g von Ho-Metall

Die hier angegebenen $\sigma_g - T$ -Kurven sind sehr ähnlich den von SPEDDING bei höheren Feldstärken gefundenen. Die Curie-Punkte stimmen gut überein. Im Temperaturbereich um 132° K und höher wurden keine Messungen durchgeführt.

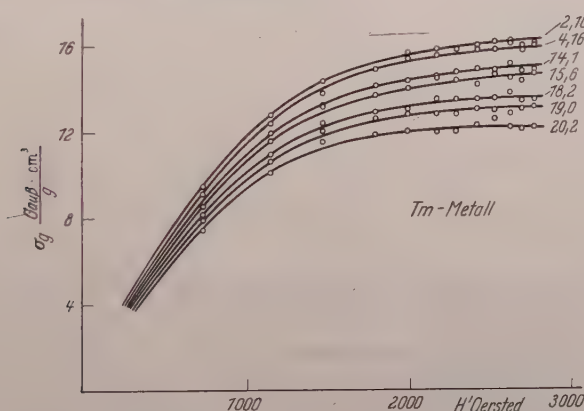


Fig. 10. Feldstärkenabhängigkeit der Magnetisierung σ_g von Tm-Metall

8. Thulium. Das Thulium-Metall stellte wieder F.H. SPEDDING in kompakter Form zur Verfügung.

⁴⁴ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 387. Amsterdam 1957.

Die Suszeptibilität war im Temperaturbereich des flüssigen Stickstoffs feldstärkenunabhängig. Bei tieferen Temperaturen traten auch hier Sättigungserscheinungen auf. Nach Fig. 10 werden die magnetischen Momente mit abnehmender Temperatur größer. Das Thulium-Metall ist also für $T < 20^\circ \text{ K}$ ferromagnetisch. Aus dem Temperaturgang ist zu entnehmen, daß der Curie-Punkt etwas höher als 20° K liegen dürfte.

SPEDDING⁴⁵ untersuchte das Thulium bei $T > 4^\circ \text{ K}$. Bei 51° K fand er einen Neel-Punkt. Bei SPEDDING liegt die Isotherme für $4,2^\circ \text{ K}$ im $\sigma - H'$ -Diagramm unterhalb der für 20° K . Er schließt daraus, daß das Thulium nicht ferromagnetisch wird. Fig. 10 zeigt aber deutlich ferromagnetisches Verhalten. Es ist denkbar, daß bei den höheren Feldern von SPEDDING sich der Temperaturgang umkehrt.

9. Ytterbium. Das Ytterbium-Metall wurde in Stückform von der Firma *Grossmann* in Bremen geliefert. Die angegebene Reinheit betrug 99,9%.

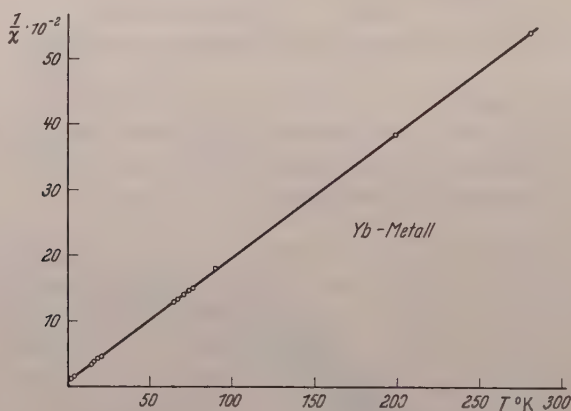


Fig. 11. Temperaturgang von $1/\chi$ für Yb-Metall

Eine Feldabhängigkeit der Suszeptibilität wurde nicht festgestellt. Die Abhängigkeit von der Temperatur ist, wie Fig. 11 zeigt, bis zur tiefsten Meßtemperatur linear. Es gilt also das Curie-Weißsche Gesetz mit $p = (0,64 \pm 0,02) \text{ B.M.}$ und $\Theta = -5^\circ \text{ K}$. Der theoretische Wert für das Yb^{3+} -Ion beträgt $p = 4,54 \text{ B.M.}$ und für das Yb^{2+} -Ion null³⁶. Das Meßergebnis kann nur durch die Annahme erklärt werden, daß im Metall vorwiegend Yb^{2+} -Ionen vorliegen. Der Rest an Paramagnetismus könnte durch 2 Atom-% Yb^{3+} -Ionen erklärt werden.

⁴⁵ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 390. Amsterdam 1957.

KLEMM und BOMMER³⁹ untersuchten das Metall bei 90° K und bei Zimmertemperatur. Sie fanden bei 292° K: $\chi = 250 \cdot 10^{-6}$.

SPEDDING⁴⁶ gibt für die Zimmertemperatur an: $\chi = 81 \cdot 10^{-6}$. Der hier gefundene Wert $\chi = 186 \cdot 10^{-6}$ liegt dazwischen.

Der Gang der Werte und der Umstand, daß SPEDDING, der die reinsten Präparate besitzt, den niedrigsten Wert angibt, legt die Vermutung nahe, daß der Rest an Paramagnetismus ganz von Verunreinigungen herrührt. Der Speddingsche Wert würde 1% Yb³⁺-Ionen zulassen. Bei Verunreinigung durch stark paramagnetische seltenen Erden, z.B. Gd, würde ein noch niedrigerer Anteil herauskommen.

Auch das Atomvolumen weist darauf hin, daß das Yb-Metall aus zweiwertigen Ionen aufgebaut ist. Nach KLEMM und BOMMER³⁹ liegen die Atomvolumina der seltenen Erden auf einer Kurve zwischen La (mit 32,5 cm³/Mol) und Cp (mit 18 cm³/Mol) mit zwei Ausnahmen: Eu und Yb, die auf einer anderen Kurve zusammen mit Ba liegen. Somit müßte, worauf auch SPEDDING hinweist, der Magnetismus des Eu-Metalls (es wurde bisher nicht untersucht) ebenfalls dem zweiwertigen Ion entsprechen.

10. Bemerkung zu den Meßergebnissen. Die Unterschiede zwischen den Ergebnissen verschiedener Autoren sind bei den Metallen viel größer als bei den Salzen. Dies betrifft nicht die magnetischen Momente selbst. Hier ist die Übereinstimmung sehr gut. Unstimmigkeiten bestehen aber hinsichtlich der durch Koppelungskräfte (Austauschkräfte) bedingten Eigenschaften, also darüber, ob Ferro- oder Antiferromagnetismus auftritt. Offenbar werden die Wechselwirkungseffekte sehr stark von chemischen Verunreinigungen, z.B. vom Sauerstoff beeinflußt. Ferner scheint es von großer Bedeutung zu sein, ob das Metall in fester Form oder in Pulverform untersucht wird. So zeigt das als ferromagnetisch bekannte Dysprosium-Metall diese Eigenschaft nicht im Pulver.

Ich danke Herrn Professor G. Joos sowohl für die Überlassung der interessanten Arbeit, als auch für seine stete Betreuung, seine wertvollen Ratschläge und die vielen anregenden Diskussionen.

Herrn Professor W. MEISSNER, habe ich dafür zu danken, daß ich die Messungen bei tiefen Temperaturen als Gast im Institut für Tieftemperaturforschung in Herrsching durchführen konnte.

Ganz besonderen Dank schulde ich Herrn Professor F.H. SPEEDING vom Ames-College (Iowa) für die Überlassung der reinsten Metallpräparate der Welt.

Ferner bin ich dem European Office of the Air Research and Development Command, United States Air Forces für ein Stipendium und für finanzielle Unterstützung der Arbeit zu Dank verpflichtet.

⁴⁶ SPEDDING, F.H.: Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 391. Amsterdam 1957.

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Winkel- und Energieverteilung der Photoprotonen aus dem Prozeß $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$ *

Von

F. GUDDEN und J. EICHLER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 18. November 1957)

Mit der γ -Strahlung eines 15 MeV-Betatrons wurde der Prozeß $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$ dicht oberhalb der Schwelle mit einer Wilsonkammer untersucht. Für die Energie- bzw. Winkelverteilung wurden 597 bzw. 1218 Protonenspuren ausgemessen. Die Energieverteilung zeigt Maxima bei 0,71 und 0,84 MeV. Die Winkelverteilung ist eine nahezu reine $\sin^2\theta$ -Verteilung. Dieses Ergebnis wird im Hinblick auf die Compoundkern-Vorstellung und die Theorie des direkten Photoeffekts von COURANT diskutiert. Der Prozeß führt vermutlich zu einem angeregten Zustand des Cl^{39} bei etwa 0,8 MeV mit dem Spin $\frac{1}{2}^+$.

Einleitung

Durch die Untersuchung von (γ, p) -Prozessen will man vor allem Auskunft über den Mechanismus des Kernphotoeffektes erhalten. Dafür stehen im wesentlichen zwei Modelle zur Verfügung: die Compoundkern-Theorie und das Modell des direkten Photoeffektes von COURANT [1] mit seiner Erweiterung durch WILKINSON [2].

Beide Modelle führen zu verschiedenen Verhältnissen der Wirkungsquerschnitte (γ, p) zu (γ, n) und im allgemeinen zu verschiedenen Winkelverteilungen der emittierten Nukleonen. Beim direkten Photoeffekt hat für elektrische Dipolabsorption die Winkelverteilung der Protonen die Form $I(\theta) = a + b \cdot \sin^2 \theta$, wobei das Verhältnis $a:b$ nur von dem Bahndrehimpuls des Protons vor der Absorption des γ -Quants und von dem Bahndrehimpuls nach der Emission abhängt. Ebenso lassen sich für einen Compoundkern die Winkelverteilungen berechnen, die zu verschiedenen Spins des Ausgangskerns, des Restkerns und verschiedenen Bahndrehimpulsen des emittierten Protons gehören. Dem direkten Prozeß schreibt man vor allem die anomal hohe Protonenausbeute bei schweren Elementen zu.

Am Argon ist der Kernphotoeffekt von verschiedenen Autoren untersucht worden. WILKINSON und CARVER [3] bestrahlten ein argongefülltes Proportionalzählrohr mit der Li- γ -Strahlung. Sie erhielten eine Energieverteilung der Protonen mit einem Maximum bei 2,5 MeV. Das

* Eine vorläufige Mitteilung erschien in Naturwiss. 44, 508 (1957).

gleiche Maximum (2,6 MeV) zeigte auch die Energieverteilung von SPICER [4], der die in Argon durch eine 22,5 MeV-Bremsstrahlung ausgelösten Protonen in Kernphotoplaten untersuchte. Dabei genügten die Protonen von einer Energie kleiner als 3 MeV einer Winkelverteilung der Form $I(\vartheta) = a + b \cdot \sin^2 \vartheta \cdot (1 + c \cdot \cos \vartheta)$ mit einem Verhältnis $a:b:c = 1:80:0,25$. Ein so hoher $\sin^2 \vartheta$ -Anteil ließ sich nach der Theorie des direkten Photoeffektes nur durch die Annahme erklären, daß ein Proton aus der $2s_{1/2}$ -Schale des A^{40} -Kerns emittiert wird. Wenn das richtig ist, sollte nach SPICER der von McPHERSON, PEDERSON und KATZ [5] beobachtete Anstieg des Wirkungsquerschnittes bei 16 MeV Quantenenergie verursacht sein durch die nun einsetzende Ablösung der stärker gebundenen s -Protonen aus der angenommenen Schalenmodell-Konfiguration $(2s_{1/2})^2 (1d_{3/2})^2$ des A^{40} . Zur Prüfung dieser Vorstellung schlug er daher vor, die Winkelverteilung von Protonen auszumessen, die von Photonen einer kleineren Energie als 16 MeV ausgelöst wurden. Dann sollte die direkte Emission von Protonen aus der halbgefüllten $1d_{3/2}$ -Schale zu einer Winkelverteilung der Form $I(\vartheta) = 1 + \sin^2 \vartheta$ führen.

Über den Cl^{39} -Restkern läßt sich nach SPICERS Messungen folgendes sagen: Ist er durch einen direkten Photoeffekt entstanden und schließt man die Möglichkeit der Anregung weiterer Nukleonen aus, so besitzt er die Konfiguration $(2s_{1/2})^1 (1d_{3/2})^2$, also den Spin $1/2^+$. Derselbe Spin folgt aus der Winkelverteilung auch, wenn man die Bildung eines Compoundkerns mit definiertem I annimmt. Andererseits ergab sich aus späteren Messungen [6] an der β -Zerfallsreihe $Cl^{39} - A^{39} - K^{39}$ für den Spin des Grundzustandes von Cl^{39} eindeutig der Wert $3/2^+$. Das heißt, die von SPICER beobachteten Übergänge führten zu einem angeregten Zustand des Cl^{39} . Bei Quantenenergien dicht oberhalb der Reaktionsschwelle sollte man nun einen bevorzugten Übergang in den Grundzustand und damit eine andere Winkelverteilung erwarten.

Meßmethode und Apparatur

Bei der Untersuchung von (γ, p) -Prozessen dicht oberhalb der Schwelle scheidet die sonst häufig verwendete Photoplatenmethode von vornherein aus. Die Brauchbarkeit einer Wilsonkammer für diesen Zweck zeigten als erste GAERTTNER und YEATER [7]. WRIGHT u. Mitarb. [8] haben in ihrer Arbeit über den (γ, p) -Prozeß am Stickstoff die Methode zu hoher Vollendung weiterentwickelt. Das Wesentliche ihrer Arbeitsweise besteht darin, so kurz nach dem Einschuß der γ -Strahlen zu belichten, daß die Nebeltröpfchen noch nicht zu sehr angewachsen sind. Dann sind die Spuren des hohen Elektronenuntergrundes im Gegensatz zu der Spur eines stark ionisierenden Protons noch kaum sichtbar.

Die hier verwendete Wilsonkammer hat ein Volumen von $38 \times 30 \times 16 \text{ cm}^3$ mit einer beleuchteten Tiefe von 10 cm. Fig. 1 zeigt einen Querschnitt durch die gesamte Anordnung. Das von der Antikathode des Betatrons ausgehende und kollimierte γ -Strahlenbündel durchsetzt zunächst eine Paraffinschicht zur Abbremsung von Photoneutronen. Es genügt, eine Paraffinschicht an der Vorderseite anzubringen. Denn die von anderen Seiten in die Kammer eindringenden Neutronen sind alle

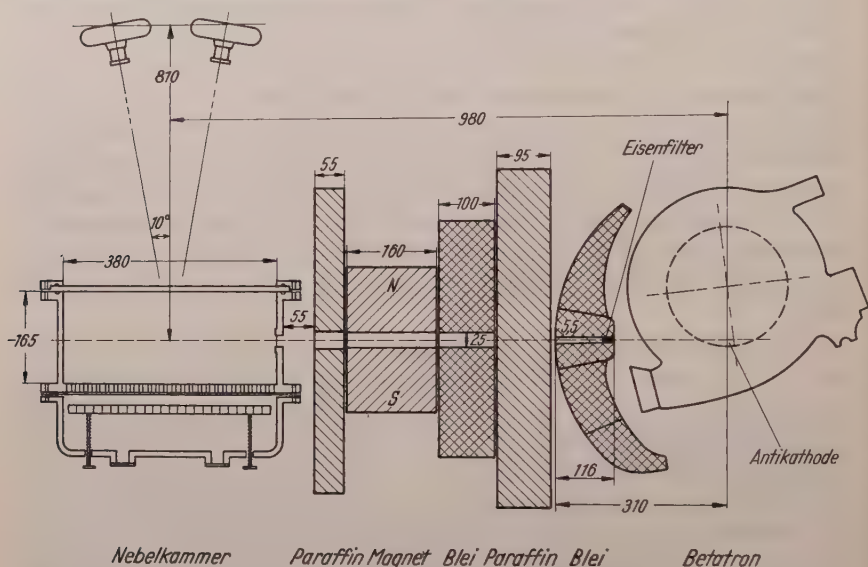


Fig. 1. Querschnitt durch die Versuchsanordnung

thermisch und können keine Rückstoßprotonen erzeugen. Der Reinigungsmagnet mit einer Luftspaltinduktion von 2500 Gauß hat die Aufgabe, die aus dem Paraffin austretenden Elektronen aus dem Strahl zu lenken und somit den Elektronenuntergrund in der Wilsonkammer möglichst niedrig zu halten. Durch eine 50μ dicke Hostaphanfolie tritt der γ -Strahl von $13 \times 1 \text{ cm}^2$ Querschnitt in die Kammer ein.

Zur Aufnahme der Spuren dienten zwei Kleinbildkameras (Leica If) mit Leitz-Elmar-Objektiven ($f = 50 \text{ mm}$). Die optischen Achsen waren um je 10° gegen die Vertikale geneigt. Dem mittleren Aufnahmeabstand von 81 cm entsprach ein Abbildungsmaßstab von 15:1. Da die Photoprotonen beim Argon vorwiegend senkrecht zum γ -Strahl austreten, wurde die von den optischen Achsen der Kameras aufgespannte Ebene in die Strahlrichtung gelegt, um später die Auswertung zu erleichtern. Belichtet wurde mit einer Philips-Blitzlampe PF 900 X. Die Beleuchtungsstärke reichte aus für eine Abblendung der Kameraobjektive auf

ein Öffnungsverhältnis von 1:11, so daß über die ganze Kammertiefe genügende Schärfe gewährleistet war.

Von großer Wichtigkeit für die Güte der Spurenausmessung ist die Genauigkeit, mit der man bei der Rückprojektion die Lage der Filme während der Aufnahme reproduzieren kann, besonders bezüglich des Abstandes der beiden Bilder, d.h. bei unserer Anordnung in der Längsrichtung des Filmes. Dazu ist ähnlich wie bei ALLEN u. Mitarb. [9] in die Filmfenster der Kameras je ein schmaler Glassteg mit einem feinen eingätzten Längsstrich senkrecht zur Filmrichtung so eingekittet, daß der Strich unmittelbar auf der Filmschicht liegt und sich auf jedem Bild scharf abzeichnet. Eine zusätzliche seitliche Führung des Filmes verhindert eine Verschiebung in der Querrichtung. Die Filmandruckplatte besteht aus Glas, so daß die Anordnung in gleicher Weise zur Rückprojektion verwendet werden kann.

Die Wilsonkammer läßt sich leicht mit dem Betatron synchronisieren. Die Steuerung der schnellen Vorgänge geschieht elektronisch, die der langsamen durch ein mechanisches Schaltwerk.

Durchführung der Messungen

Die Wilsonkammer wurde gründlich mit Argon durchspült, bevor sie durch ein feines Schwebstofffilter bis zum Enddruck gefüllt wurde. Die Reinheit des verwendeten Argon betrug nach den Angaben der Herstellerfirma (Linde) 99,9%. Als kondensierbarer Dampf diente Wasser, weil damit gegenüber Alkohol die Zahl der neutroneninduzierten Rückstoßprotonen auf ein sechstel herabgesetzt wird. Der Anfangsdruck des Kammergases wurde auf 253 Torr über dem äußeren Luftdruck konstant gehalten. Das günstigste Expansionsverhältnis war 1,18. Der Enddruck im expandierten Zustand wurde halbstündlich abgelesen. Die Raumtemperatur war auf $\pm 1^\circ$ konstant.

Der zeitliche Ablauf der Vorgänge war folgender: Der Elektroneneinschuß in das Betatron wurde nur alle 3 min für genau einen Impuls freigegeben. 4 msec vorher war bereits die Expansion abgeschlossen und 7 msec später zündete der Blitz. Bis zur nächsten Expansion mußte die Kammer durch zwei langsame Nachexpansionen und ein elektrisches Saugfeld wieder von Kondensationskeimen gereinigt werden.

Zur Auswertung der Spuren wurden die entwickelten Filme in die Kameras eingelegt und so lange durchgezogen, bis sich die Strichmarke mit ihrem Bild genau deckte. Der Fehler der Einstellung war kleiner als 0,03 mm. Der Film nahm dann dieselbe Lage ein wie bei der Aufnahme. Durch die gläserne Andruckplatte projizierte man die Bilder auf einen beweglichen Schirm, der so eingestellt wurde, daß beide Protonenspurten zur Deckung kamen. Das Bild der Protonenspur konnte nun nach Länge und Winkel ausgemessen werden. Als Kontrolle für

richtige Einstellung der Filme dienten die in der Kammer gespannten feinen Drähte des elektrischen Saugfeldes.

Die Reichweitenmessungen sind auf $\pm 0,5$ mm genau, was bei 1,5 MeV Protonenenergie einem Auflösungsvermögen von 25 keV entspricht. Das gilt für die Protonen, die zur Kammerebene weniger als $|\varphi| = 60^\circ$ geneigt sind. Für die Messung des Polarwinkels ϑ wurden auch noch Spuren mit einem Azimutwinkel $|\varphi| = 70^\circ$ herangezogen. ϑ ist dann im Mittel immer noch auf $\pm 3^\circ$ genau.

Zur Berücksichtigung des unterschiedlichen Bremsvermögens von Argon und Luft wurde mit der Reaktion $N^{14}(n_{th}, p)C^{14}$, die Protonen mit einer Energie von 584 keV liefert, ein Eichpunkt der Energie-Reichweitenbeziehung festgelegt. Zur Durchführung der Messung war dem Argon in der Wilsonkammer 10% Luft beigemischt. Die Neutronen wurden durch die Reaktion $D^2(\gamma, p)n$ in schwerem Wasser erzeugt und in Paraffin abgebremst. Die Aufnahmebedingungen waren die gleichen wie sonst auch, lediglich der primäre Röntgenstrahl wurde ganz unterdrückt. Nach einer Korrektur von 0,5% für die Luftbeimischung erhält man für das Bremsvermögen von Argon relativ zu Luft den Wert 0,95.

Die gemessenen und auf Normaldruck und Normaltemperatur umgerechneten Reichweiten wurden unter Berücksichtigung des unterschiedlichen Bremsvermögens nach der Energie-Reichweitenbeziehung von BETHE [10] in Energien ausgedrückt. Dabei wurde die Energieabhängigkeit des relativen Bremsvermögens zwischen 0,6 und 1,5 MeV vernachlässigt. Die Korrekturen für Temperatur, Druck des Kammergases im expandierten Zustand und Luftdruck machen durchweg weniger als 1,5% aus.

Abschätzung des Beitrages anderer Kernreaktionen zum Untergrund

Neben den Photoprotonen aus dem A^{40} , dessen Häufigkeit im natürlichen Isotopengemisch 99,6% beträgt, können stark ionisierende Teilchen noch durch andere Kernreaktionen entstehen, da die Wilsonkammer auch Wasserdampf und Spuren von Stickstoff enthält. Die Tabelle 1 gibt die Schwellenenergien* der Kernprozesse an, die mit einem (γ, p) -Prozeß verwechselt werden könnten.

Der Partialdruck des Stickstoffs war mit Sicherheit kleiner als 0,5 Torr, wie sich leicht daraus abschätzen läßt, daß auf insgesamt 2500 durchmusterten Aufnahmen nur sechs Protonen mit der für den Prozeß $N^{14}(n_{th}, p)C^{14}$ charakteristischen Reichweite zu finden waren,

* Berechnet nach der Massenzahltablelle von A.H. WAPSTRA, Physica, Haag 21, 367 (1955).

während mit luftgefüllter Wilsonkammer pro Aufnahme im Mittel drei dieser Spuren vorkamen.

Aus dem Wasserdampf-Partialdruck ergibt sich ein Sauerstoffanteil von 2%. Kontrollmessungen mit CO_2 als Kammerngas ergaben aber, daß der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $O^{16}(\gamma, p)N^{15}$ im Energiebereich bis 15 MeV höchstens halb so groß sein kann wie der für die Reaktion $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$. Wir können daraus schließen, daß höchstens 1% der ausgemessenen Photoprotonen aus der Reaktion $O^{16}(\gamma, p)N^{15}$ stammen.

Die Energie der im Blei und im Eisen entstandenen Photoneutronen reicht bei $E_{\gamma_{\max}} = 15$ MeV nicht mehr zur Auslösung der Reaktion $A^{40}(n, p)Cl^{40}$ aus.

Zum Protonenuntergrund tragen demnach nur noch die neutroneninduzierten Rückstoßprotonen bei. Ihren Anteil am Endergebnis kann man daraus abschätzen, daß auf den 2500 für die Winkelverteilung durchmusterten Aufnahmen 98 Spuren gefunden wurden, die außerhalb des Strahls entstanden waren und daher nur Rückstoßprotonen sein konnten.

Davon entfielen 50 Protonen auf die 1500 Aufnahmen der zweiten Versuchsreihe, die für die Energieverteilung benutzt wurde. Nach Messungen von H. WÄFFLER [11] sind die energiereichen Neutronen nahezu ebenso stark gebündelt wie der γ -Strahl. Wenn wir annehmen, daß der Neutronenfluß im γ -Strahl etwa dreimal höher ist als im übrigen Kammervolumen, so läßt sich aus dem Verhältnis von beleuchtetem zu dem vom γ -Strahl durchsetzten Volumen abschätzen, daß bei der Auswertung der Energieverteilung nicht mehr als 15, der Winkelverteilung nicht mehr als 30 Spuren von Rückstoßprotonen stammen.

Ergebnisse

Die gemessene Energieverteilung von rund 600 Protonen der zweiten Versuchsreihe zeigt Fig. 2. Die Intervallbreite von 10 keV in der Energieskala entspricht etwa einem Drittel des Auflösungsvermögens. Es heben sich deutlich zwei schmale Maxima bei Protonenenergien von 713 ± 10 und 837 ± 10 keV heraus. Das sind Gesamtenergien, also Summen der Energien von Proton und Rückstoßkern, von 732 ± 10 und 858 ± 10 keV. Die Linienbreite von 30 keV scheint nur durch das begrenzte Auflösungsvermögen der Apparatur bedingt zu sein, denn die schraffiert eingezeichnete Eichlinie ist genau so breit. Über weitere Niveaus kann man keine

Tabelle 1

Kern	Prozeß	Schwellenenergie in MeV, berechnet
A^{40}	(γ, p)	12,44
	(γ, np)	20,53
	(γ, d)	18,30
	(n, p)	8,1
O^{16}	(γ, p)	12,11
	(n, p)	9,62
N^{14}	(γ, p)	7,54
	(n, p)	— 0,628
H^1	Rückstoßprotonen	

statistisch gesicherten Aussagen machen. Eines sei aber noch angemerkt: Es gibt keine Protonen einer kleineren Gesamtenergie E_{ges} als 0,61 MeV

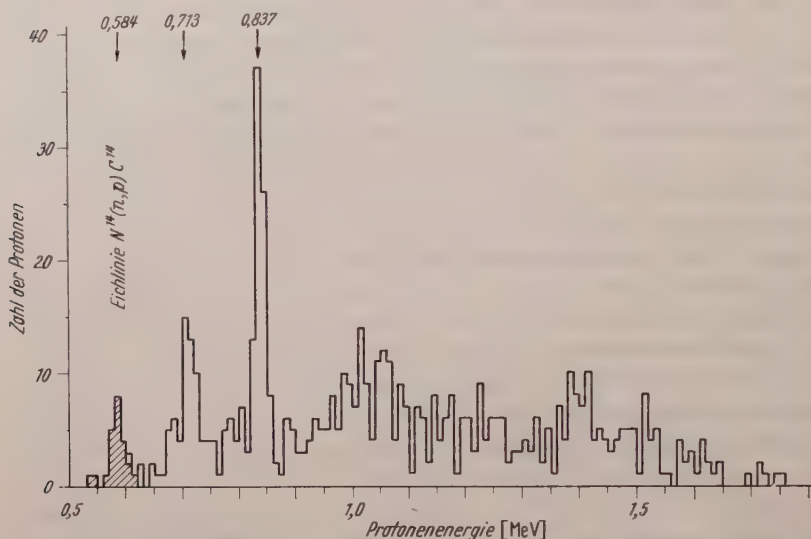


Fig. 2. Energieverteilung von 597 Protonen aus der Reaktion $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$. Schraffiert: Eichprotonen aus der Reaktion $N^{14}(n, p)C^{14}$

und bis auf sechs Ausnahmen keine Protonen mit E_{ges} größer als 1,8 MeV. Diese sechs Protonen haben folgende Gesamtenergien: 2,05; 2,22; 2,53; 2,57 und zweimal 2,63 MeV.

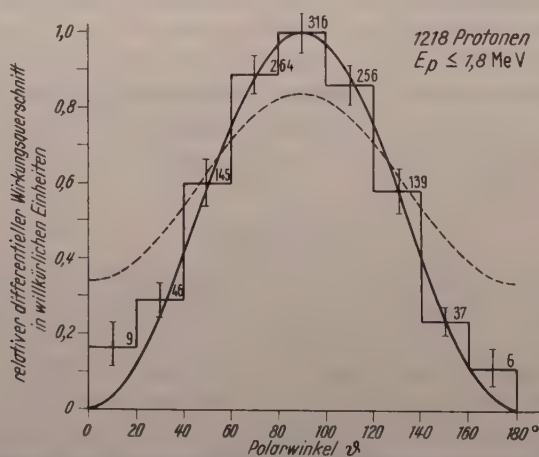


Fig. 3. Winkelverteilung von 1218 Protonen aus der Reaktion $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$. Die gemessene Anzahl von Protonen im Winkelintervall ist jeweils angegeben. Die ausgezogene Kurve entspricht einer reinen $\sin^2 \theta$ -Verteilung, die gestrichelte einer Verteilung der Form $2 + 3 \sin^2 \theta$. Alle drei Kurven sind auf gleiche Gesamtzahl von Protonen normiert

Fig. 3 zeigt die Winkelverteilung von rund 1200 Protonen aus dem ganzen Energiebereich. Im Histogramm ist die relative Protonenausbeute pro Raumwinkelement aufgetragen gegen den Winkel ϑ zwischen dem γ -Strahl und der Richtung des emittierten Protons. Die wirklich gemessene Anzahl ist jedesmal angegeben.

Nun liefert die Theorie Winkelverteilungen der Form $a + b \sin^2 \vartheta$. Zum Beispiel kann der isotrope Untergrund a gleich Null sein. Dann haben wir die ausgezogene $\sin^2 \vartheta$ -Kurve. Ist a nicht gleich Null, so muß es bei einem reinen Übergang mindestens $2/3$ von b sein. Dem entspricht die gestrichelt eingezeichnete Kurve. Alle Kurven sind so normiert, daß sie die gleiche Gesamtzahl von Protonen umfassen. Offensichtlich stimmt die ausgezogene Kurve weit besser mit den Meßergebnissen überein. In der Tat zeigt die Methode der kleinsten Quadrate, daß der Wert a nur 3,1% von b beträgt. Daher dürfen wir bei den späteren Überlegungen von einer reinen $\sin^2 \vartheta$ -Verteilung ausgehen.

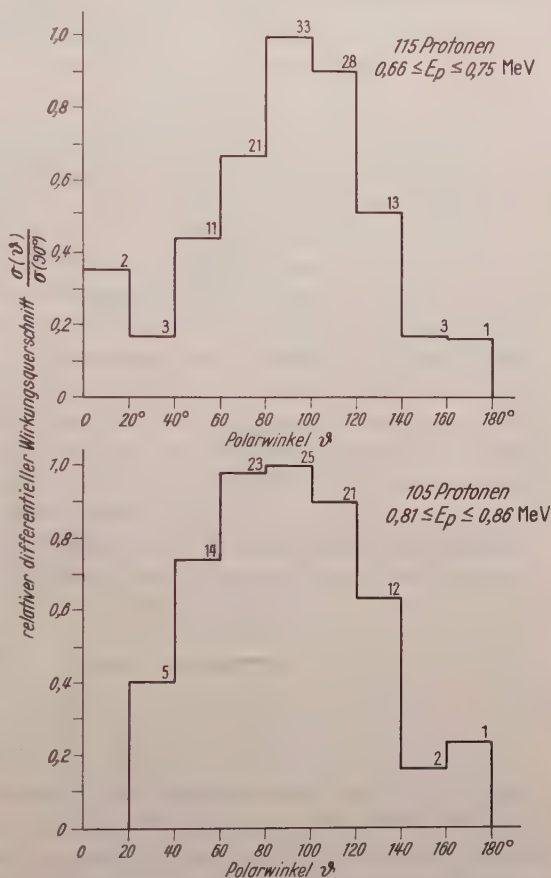


Fig. 4. Winkelverteilung für die beiden Protonengruppen mit Energien von 0,713 und 0,837 MeV

Fig. 4 zeigt nun noch die Winkelverteilungen der beiden Protonengruppen für sich. Innerhalb der hier größeren statistischen Fehler haben auch sie keine wesentlich andere Form.

Diskussion

Es ist nun zu untersuchen, unter welchen Voraussetzungen die Theorie eine Winkelverteilung liefert, die der gemessenen entspricht.

Für elektrische Dipolabsorption erhält COURANT [1] Winkelverteilungen, die nur von dem Bahndrehimpuls l des Protons vor der Absorption des γ -Quants und von dem Bahndrehimpuls $l \pm 1$ nach der Emission abhängen. Nämlich für:

$$\left. \begin{aligned} l \rightarrow l+1 \quad I(\vartheta) &= l + \frac{1}{2}(l+2) \sin^2 \vartheta \\ l \rightarrow l-1 \quad I(\vartheta) &= (l+1) + \frac{1}{2}(l-1) \sin^2 \vartheta. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Eine reine $\sin^2 \vartheta$ -Verteilung ergibt sich nur, wenn $l=0$. Dann geht das Proton von einem gebundenen s -Zustand in einen freien p -Zustand über.

Betrachtet man die Bildung eines Compoundkerns, so braucht die entstehende Winkelverteilung keineswegs isotrop zu sein, wie nach der einfachsten statistischen Theorie zu erwarten wäre. Denn die Erhaltung der z -Komponente des Drehimpulses stellt nach WOLFENSTEIN [12] ein „Gedächtnis“ des Kerns dafür dar, aus welcher Richtung das absorbierte Quant gekommen ist. Für die Absorption eines Quants gegebener Multipolordnung in einem Kern gegebenen Spins lassen sich die Winkelverteilungen berechnen, die zu verschiedenen Bahndrehimpulsen l_p des emittierten Protons und zu verschiedenen Channel-Spins I_c gehören. Dabei ist der Channel-Spin die Vektorsumme der Spins von Proton und Restkern. Die Winkelverteilungen sind bei SPICER [4] und [13] zusammengestellt und in Tabelle 2 wiedergegeben.

Allgemein berechnet man für die drei möglichen Fälle der Dipolabsorption in einem Kern mit dem Spin 0^+ :

$$\left. \begin{aligned} l_p = I_c + 1 \quad I(\vartheta) &= I_c + \frac{1}{2}(I_c + 2) \sin^2 \vartheta \\ l_p = I_c \quad I(\vartheta) &= 1 + \cos^2 \vartheta \\ l_p = I_c - 1 \quad I(\vartheta) &= (I_c + 1) + \frac{1}{2}(I_c - 1) \sin^2 \vartheta. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Eine reine $\sin^2 \vartheta$ -Verteilung ergibt sich nur, wenn der Restkern in einem $s_{1/2}$ -Zustand zurückbleibt. Ein $p_{1/2}$ -Zustand ist auszuschließen, weil dann ein Proton abgelöst werden müßte und gleichzeitig ein weiteres in die nach dem Schalenmodell beträchtlich höher liegende $p_{1/2}$ -Schale gehoben werden müßte.

Bisher lieferten die betrachteten Theorien eine verschiedenartige Deutung der Meßergebnisse. Beide Bilder verschmelzen aber, wenn wir nun das Schalenmodell heranziehen. A^{40} hat die Protonenkonfiguration $(2s_{1/2})^2 (1d_{3/2})^2$. (Diese Konfiguration wird jedenfalls durch das Schalenmodell nahegelegt und durch die vorliegenden Messungen bestätigt.) Die Ablösung eines s -Protons durch einen direkten Photoeffekt führt zu einem Cl^{39} -Kern in der Konfiguration $(2s_{1/2})^1 (1d_{3/2})^2$. Der Spin ist $1/2^+$, gerade wie nach dem Compoundkern-Modell. Genau umgekehrt schließt man aus dem Spin $1/2^+$ des Restkerns auf die Ablösung eines s -Protons. Ähnliche wechselseitige Überlegungen gelten ganz allgemein für Dipol-

Tabelle 2. Berechnete Winkelverteilungen für $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$ -Protonen

$$A^{40} + \gamma \rightarrow A^{40*} \rightarrow Cl^{39} + p$$
$$\vec{I}_A + \vec{l}_\gamma \rightarrow \vec{I}_B \rightarrow \vec{I}_c + \vec{l}_p$$

$I_A = 0^+$ Spin des Anfangszustandes, l_γ Spin des γ -Quants, I_B Spin des Compoundkerns, I_c Channel-Spin, l_p Bahndrehimpuls des Protons.

l_γ	I_B	l_p	I_c	$I_{Cl^{39}}$	$I(\vartheta)$
1	1 ⁻	1	0	1/2 ⁺	$\sin^2 \vartheta$
1	1 ⁻	0	1	1/2 ⁻ , 3/2 ⁻	const
1	1 ⁻	2	1	1/2 ⁻ , 3/2 ⁻	$2 + 3 \sin^2 \vartheta$
1	1 ⁻	1	1	1/2 ⁺ , 3/2 ⁺	$1 + 1 \cos^2 \vartheta$
1	1 ⁻	1	2	3/2 ⁺ , 5/2 ⁺	$6 + 1 \sin^2 \vartheta$
1	1 ⁻	2	2	3/2 ⁻ , 5/2 ⁻	$1 + 1 \cos^2 \vartheta$
1	1 ⁻	3	2	3/2 ⁺ , 5/2 ⁺	$1 + 1 \sin^2 \vartheta$
1	1 ⁻	2	3	5/2 ⁻ , 7/2 ⁻	$4 + 1 \sin^2 \vartheta$
1	1 ⁺	1	0	1/2 ⁻	$\sin^2 \vartheta$
1	1 ⁺	1	1	1/2 ⁻ , 3/2 ⁻	$1 + 1 \cos^2 \vartheta$
2	2 ⁺	1	1	1/2 ⁻ , 3/2 ⁻	$1 + 1 \cos^2 \vartheta$
2	2 ⁺	3	1	1/2 ⁻ , 3/2 ⁻	$1 + 6 \cos^2 \vartheta - 5 \cos \vartheta$

absorption ohne Spin-Umklapp-Prozesse ($l_p = I_c$) in g-g-Kernen. Das erkennt man sofort aus dem Vergleich der Formeln (2) mit den Formeln (1) von COURANT. In solchen Fällen läßt die Winkelverteilung keine Entscheidung zwischen den Theorien zu.

Die vorliegende Reaktion kann nur zu einem *angeregten* Zustand des Cl^{39} -Kerns führen. Denn der Grundzustand hat nach β -Zerfallsmessungen von PENNING u. Mitarb. [6] eindeutig den Spin 3/2⁺. Könnten nicht aber mehrere angeregte $s_{1/2}$ -Niveaus beteiligt sein? Dagegen spricht die bloße Existenz von auflösbaren Protonengruppen mit gleicher Winkelverteilung. Einerseits ist es von vornherein unwahrscheinlich, daß dicht über dem Grundzustand des Cl^{39} mehrere $s_{1/2}$ -Niveaus liegen, andererseits wären dann so viele Übergänge möglich, daß man kaum mit auflösbaren Protonengruppen rechnen könnte.

Die Lage des $s_{1/2}$ -Niveaus kann man grob aus der Maximalenergie $E_{ges} = 1,8$ MeV des Protonenspektrums, der Grenzenenergie von 15,1 MeV des Betatrons (aus Aktivierungsmessungen bestimmt) und aus der berechneten Reaktionsschwelle von 12,44 MeV abschätzen. Danach liegt der angeregte $s_{1/2}$ -Zustand $0,8 \pm 0,2$ MeV über dem Grundzustand. Die sechs Protonen mit Energien zwischen 1,8 und 2,63 MeV entsprächen dann wahrscheinlich seltenen Übergängen in den Grundzustand.

Das überraschende Ergebnis aus der Analyse der Winkelverteilung ist folgendes: Es wird nicht etwa ein Proton aus der halbgefüllten $d_{3/2}$ -Schale abgelöst, sondern ein Proton aus der tiefer liegenden abgeschlossenen $s_{1/2}$ -Schale. Und das schon dicht oberhalb der Schwelle, also im Gegensatz zu der Vermutung von SPICER schon bei kleineren Quantenenergien als 16 MeV.

Man wird sich sofort fragen: Was verbietet die Ablösung eines Protons aus der höchstliegenden Schale? Oder, was verbietet einen Übergang in den Grundzustand des Cl^{39} ? Nach beiden Theorien stünden für einen solchen Übergang Möglichkeiten offen, in denen das emittierte Proton den Bahndrehimpuls 2 ± 1 , also 3 oder 1 hat. Der Bahndrehimpuls 3 ist durch die Drehimpulsbarriere benachteiligt. Andererseits verbietet die Theorie von WILKINSON Übergänge von l nach $l-1$, also auch den Bahndrehimpuls 1. Nimmt man nämlich an, daß das Proton vor der Emission in einen Ein-Teilchen-Zustand übergeht, der durch das Schalenmodell beschrieben werden kann, dann ist die Stärke des Übergangs proportional zum Quadrat des Radialanteils des Dipolmatrixelementes. Dieses ist dann besonders groß, wenn sich die radiale Quantenzahl beim Übergang nicht ändert. Nun werden nach dem Schalenmodell die Schalen gleicher radialer Quantenzahl in der Reihenfolge wachsender Drehimpulse aufgefüllt. Daher sind Übergänge $l \rightarrow l-1$ nur mit gleichzeitiger Änderung der radialen Quantenzahl möglich, sind also entsprechend schwächer.

Damit wäre eine mögliche Erklärung der gemessenen Winkelverteilung gegeben. Dennoch bleibt die Frage bestehen, ob diese Erklärung wirklich ausreicht, die nahezu ausschließliche Ablösung von s-Protonen zu deuten.

Zu der Energieverteilung läßt sich nur so viel sagen: Es gibt zwei stark absorbierende Niveaus im A^{40} mit einer Breite von höchstens 30 keV und einem Abstand von 124 keV. Sie liegen etwa 14 MeV über dem Grundzustand. Ein genauerer Wert läßt sich nicht angeben, da die Lage des angeregten Niveaus im Cl^{39} nicht genau bekannt ist.

Herrn Professor Dr. O. HAXEL danken wir für die Anregung zu dieser Arbeit und seine stets fördernde Hilfe. Für fruchtbare Diskussionen danken wir Herrn Professor Dr. J. H. D. JENSEN, sowie Herrn Dr. P. BRIX. Besonderen Dank schulden wir Herrn Professor Dr. J. BECKER, der es uns in großzügiger Weise ermöglichte, die Messungen am Betatron des Czerny-Krankenhauses für Strahlenbehandlung der Universität Heidelberg durchzuführen. Bei der Vorbereitung und Durchführung der Bestrahlungen half Herr D. BERDAU, wofür ihm auch an dieser Stelle herzlich gedankt sei. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für die Bereitstellung apparativer Hilfsmittel.

Literatur

- [1] COURANT, E. D.: Phys. Rev. **82**, 703 (1951). — [2] WILKINSON, D. H.: Physica, Haag **22**, 1039 (1956), Amsterdam Report. — [3] WILKINSON, D. H., and J. H. CARVER: Phys. Rev. **84**, 466 (1951). — [4] SPICER, B. M.: Phys. Rev. **100** 791 (1955). — [5] MCPHERSON, D., E. PEDERSON and L. KATZ: Canad. J. Phys. **32**, 593 (1954). — [6] PENNING, J. R., H. R. MALTRUD, J. C. HOPKINS and F. H. SCHMIDT: Phys. Rev. **104**, 740 (1956). — [7] GAERTTNER, E. R., and M. L. YEATER: Phys. Rev. **83**, 146 (1951). — [8] WRIGHT, I. F., D. R. O. MORRISON, J. M. REID and J. R. ATKINSON: Proc. Phys. Soc. Lond. **69**, 77 (1956). — [9] ALLEN, K. R., M. LIPSICAS, W. F. WILLIAMS and D. FOTHERINGHAM: Rev. Sci. Instrum. **24**, 501 (1953). — [10] BETHE, H. A.: Rev. Mod. Phys. **22**, 213 (1950). — [11] WÄFFLER, H.: Das Brown Boveri Betatron, S. 17. 1953. — [12] WOLFENSTEIN, L.: Phys. Rev. **82**, 690 (1951). — [13] SPICER, B. M.: Phys. Rev. **99**, 33 (1955).

Aus dem Laboratoire de Luminescence de la Faculté des Sciences, Paris*

Der Gedächtniseffekt bei der Verstärkung der Lumineszenz durch elektrische Felder

Von

GEORGES DESTRIAU**

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 20. Dezember 1957)

Die Arbeit beschreibt einige Einzelheiten des kürzlich entdeckten Gedächtniseffektes der Lumineszenzfeldverstärkung. Danach ist es möglich, einen Leuchtstoff durch gleichzeitige Einwirkung eines Feldes und einer schwachen Röntgenstrahlung zu sensibilisieren. Das langsame Abklingen dieses Effektes (mehrere Stunden) und die Form der Leuchtwellen, deren Amplitude und Form sich durch Phasenverschiebungen wenig ändert, läßt es zweifelhaft erscheinen, ob der Feldverstärkungseffekt als strahlungskontrollierte Elektrolumineszenz (Photoelektrolumineszenz) erklärt werden kann.

Einleitung

Im allgemeinen vermindern elektrische Felder die Empfindlichkeit von Leuchtstoffen gegenüber Röntgen- oder ultravioletten Strahlen. Kürzlich wurde nun vom inversen Effekt¹ berichtet, nämlich von der Verstärkung der Lumineszenz durch elektrische Felder. Zuerst wurde die Feldverstärkung bei Zink- und Cadmiumsulfid-Phosphoren beobachtet, die durch Mangan aktiviert waren; jetzt sind auch einige andere Aktivatoren mit ähnlicher Wirkung bekannt geworden.

In diesen letzteren Leuchtstoffen beobachtet man immer dann eine Verstärkung, wenn der Leuchtstoff mit Röntgenstrahlen angeregt wird. Wird dagegen der Phosphor mit ultraviolettem Licht bestrahlt, so erhält man, je nach der Stärke des anregenden Strahles, entweder Verstärkung oder Auslöschung durch das elektrische Feld².

Zur Untersuchung dieser Erscheinung kann man entweder die bekannte Anordnung verwenden, bei der die empfindliche Substanz in das Dielektrikum eines Kondensators eingebettet ist, an den eine Wechselspannung gelegt ist, um Polarisierungseffekte zu vermeiden, oder

* Übersetzt im Auftrage des Verfassers von H.-E. GÜMLICH, II. Physikalisches Institut der Technischen Universität Berlin.

** Wissenschaftlicher Mitarbeiter der Firma Westinghouse.

¹ DESTRIAU, G., u. M. DESTRIAU: Meeting of the Electrochemical Society, Chicago, 2. bis 6. Mai 1954. — DESTRIAU, M.: C. R. Acad. Sci., Paris **238**, 2298 (1954). — DESTRIAU, G., J. MATTLER, M. DESTRIAU u. H.-E. GÜMLICH: Elektrochem. Soc. **102**, 682 (1955). — GÜMLICH, H.-E.: J. Phys. Radium **17**, 117 (1956).

² GOBRECHT, H., u. H.-E. GÜMLICH: J. Phys. Radium **17**, 754 (1956).

aber die Anordnung von CUSANO und WILLIAMS³, die aus einer auf leitendes Glas aufgedampften Leuchtstoffschicht besteht. Die Leuchtstoffschicht hat Kontakt zu beiden Elektroden, deshalb können Gleichspannungen verwendet werden.

Die im folgenden beschriebenen Experimente wurden mit der ersten Anordnung durchgeführt.

Allgemeines zum Gedächtniseffekt

Betrachten wir zuerst die Kurven der Fig. 1, bei der die Strahlungsstärke des Leuchtstoffes als Ordinate und die Zeit als Abszisse gewählt

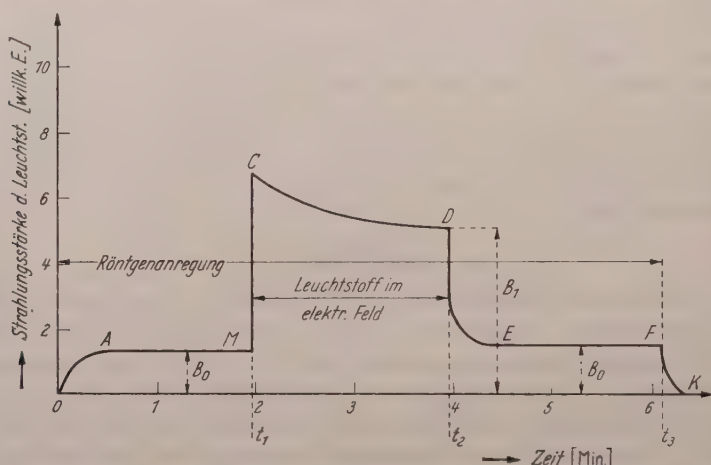


Fig. 1. Strahlungsstärke des Leuchtstoffes als Funktion der Zeit. Ununterbrochene Röntgenanregung, zeitweise Einwirkung eines elektrischen Feldes

wurde. Die Bestrahlung mit Röntgenlicht konstanter Intensität liefert den Teil OAM der Kurve (normale Strahlungsstärke im stationären Zustand B_0). Wird im Zeitpunkt t_1 ein elektrisches Feld eingeschaltet, so wächst die Strahlungsstärke sprunghaft bis zum Punkt C , nimmt dann leicht ab und erreicht schließlich einen neuen Wert B_1 , der dem stationären Fall unter Feldeinfluß entspricht (Fig. 1).

Beim Abschalten des Feldes im Zeitpunkt t_2 nimmt die Strahlungsstärke ab (DEF), um schließlich von neuem den Wert B_0 des normalen stationären Zustandes zu erreichen. Nach dem Abschalten der Röntgenstrahlen schließlich (Zeitpunkt t_3) nimmt die Strahlungsstärke schnell ab (Kurve FK). Eine Wiederholung dieser Vorgänge in derselben Reihenfolge ergibt identische Kurven.

³ CUSANO, D.A.: Phys. Rev. **98**, 547 (1955). — WILLIAMS, F.E.: Phys. Rev. **98**, 547 (1955). — CUSANO, D.A., u. F.E. WILLIAMS: J. Phys. Radium **17**, 742 (1956).

Der erste Teil der Kurven in Fig. 2 gleicht dem entsprechenden Teil der Fig. 1, d.h. nach dem Beginn der Anregung mit Röntgenstrahlen (Kurve OAM) wird das Feld zur Zeit t_1 eingeschaltet (Kurve CD). Im Zeitpunkt t_2 wird die Röntgenanregung abgeschaltet, während das Feld weiterhin auf den Leuchtstoff einwirkt. Dabei nimmt die Strahlungsstärke des Phosphors ab und erreicht den Wert Null (Kurve DK'). Im Zeitpunkt t_3 wird schließlich das elektrische Feld abgeschaltet, wobei keine Leuchterscheinungen beobachtet werden. Der Leuchtstoff bleibt

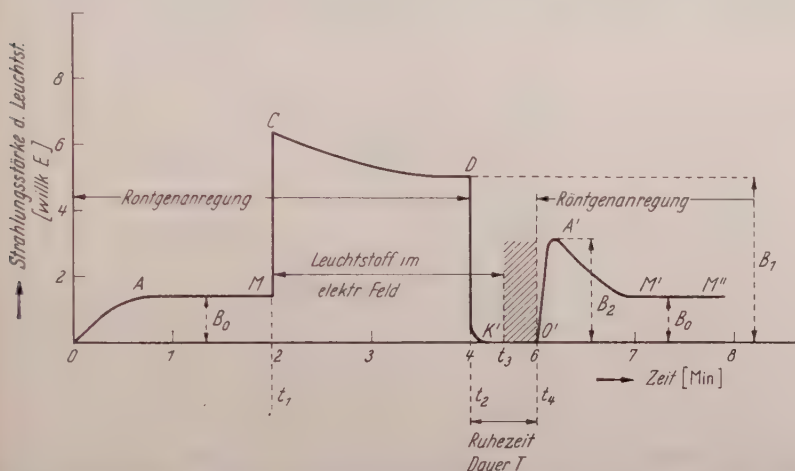


Fig. 2. Gedächtniseffekt (die erste Bestrahlung beginnt vor dem Einschalten des Feldes). Bei der zweiten Bestrahlung wächst die Strahlungsstärke des Leuchtstoffes bis zu einem Wert A' , der größer ist, als der normale Wert der Strahlungsstärke B_0 (elektrisches Feld wirkt zwischen den Zeitpunkten t_1 und t_3). Zwischen der ersten und der zweiten Bestrahlung liegt eine Ruhezeit T , die mehrere Stunden betragen kann

aber sensibilisiert, d.h.: Wenn später zur Zeit t_4 die Substanz von neuem mit Röntgenstrahlen angeregt wird, so wächst die Strahlungsstärke, wie es die Kurve $O'A'M'M''$ zeigt und durchläuft ein Maximum A' . Das Maximum A' ist deutlich höher als der Wert $M'M''$, der der normalen Lumineszenz ohne Feld (B_0) entspricht. B_2 ist der Maximalwert, den die Strahlungsstärke in A' erreicht⁴. Das Verhältnis $r_1 = \frac{B_1}{B_0}$ wird Verstärkungsfaktor genannt, $r_2 = \frac{B_2}{B_0}$ wird als Vorsensibilisierungsfaktor bezeichnet.

Es ist nicht absolut notwendig, nach dem angegebenen Schema zu verfahren, um die Vorsensibilisierung des Leuchtstoffes zu erreichen. Besonders kann man das Feld bereits von Anfang an (Punkt O in Fig. 3) wirken lassen und die Röntgenanregung zum Zeitpunkt t_1 einschalten.

⁴ DESTRIAUX, G.: Phys. Verh. 8, 15 (1957).

Quantitative Untersuchungen

Der Gedächtniseffekt, der durch den bereits definierten Vorsensibilisierungsfaktor $r_2 = B_2/B_0$ gekennzeichnet ist, ist eine Funktion:

1. Der Zeit der Ruhe zwischen dem Ende der ersten Anregung (Vorsensibilisierungsperiode) und dem Beginn der zweiten Bestrahlung.
2. Der Stärke des anregenden Feldes während der Vorsensibilisierungsperiode und deren Dauer.
3. Der Stärke der anregenden Röntgenstrahlen während der zweiten Bestrahlung.

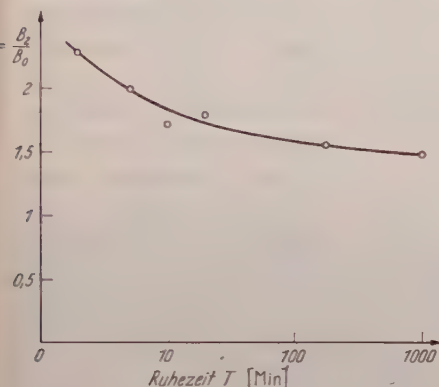


Fig. 4

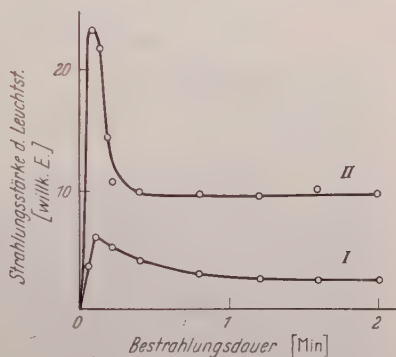


Fig. 5

Fig. 4. Die Änderung des Vorsensibilisierungsfaktors $r_2 = B_2/B_0$ als Funktion der Ruhezeit T

Fig. 5. Die Strahlungsstärke des Leuchtstoffes ohne Feld während der zweiten Anregung (Kurve $OA'M'M''$ der Fig. 2 und 3). Der Leuchtstoff ist durch die gleichzeitige Einwirkung von Röntgenstrahlen und elektrischem Feld vorsensibilisiert, die dabei verwendeten Röntgenstrahlen entsprechen einem Elektronenstrom i von $40 \mu A$ während 2 min. Das elektrische Feld ist 10 sec nach dem Ende dieser ersten Bestrahlung ausgeschaltet. Die Ruhezeit T beträgt 2 min, dann findet die zweite Anregung mit Röntgenstrahlen ohne Feld statt, mit folgenden Röhrenströmen j : $j = 0,2 \text{ mA}$ für Kurve I; $j = 0,8 \text{ mA}$ für Kurve II

Der Faktor r_2 ist, wie zu erwarten, eine abnehmende Funktion der Ruhezeit, wenn alle anderen Parameter konstant bleiben. Allerdings geht die Abnahme langsam vor sich.

Fig. 4 gibt die Resultate wieder, die mit einem $ZnS \cdot CdS$ (Mn)-Mischphosphor erhalten wurden, der 30% CdS, 70% ZnS und 10^{-4} Mn enthielt und der 1 Stunde lang bei $1030^\circ C$ gegläht worden war. Der Vorsensibilisierungsfaktor r_2 , der einen Wert von 2,3 für eine Ruhezeit von $T = 2 \text{ min}$ hat, behält nach einer Ruhezeit von 17 Stunden immer noch den beträchtlichen Wert von 1,5. Für dieselbe Substanz ist unter den gleichen Bedingungen der Verstärkungsgrad $r_1 = 3,6$.

Die Stärke des Effektes nach einer so langen Ruhezeit (mehrere Stunden) steht im Widerspruch zu der Hypothese von CUSANO und WILLIAMS³, nach der der Verstärkungseffekt eine strahlungskontrollierte

Elektrolumineszenz sei. Nach der Meinung dieser Autoren besteht die Rolle der Bestrahlung darin, Elektronen zu befreien, die fähig sind, im Feld beschleunigt zu werden. Die Abklingdauer des photoelektrischen Effektes liegt nur in der Größenordnung von einigen Zehntelsekunden, ist also sehr viel kleiner als das langsame Verschwinden des Gedächtniseffektes bei der Feldverstärkung.

Es darf angenommen werden, daß die Stärke der anregenden Bestrahlung proportional zur Röntgen-Stromstärke wächst. Dabei ist

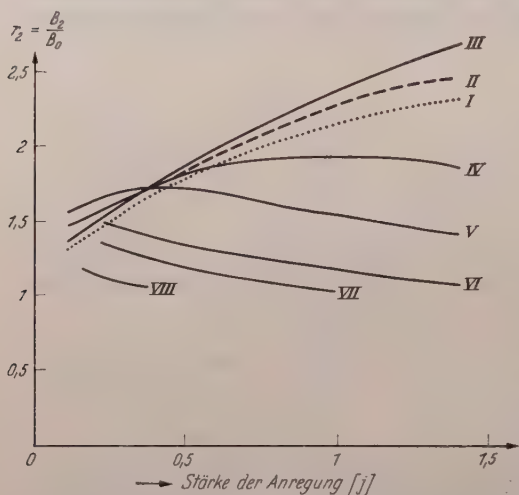


Fig. 6. Änderung des Vorsensibilisierungsfaktors $r_2 = B_2/B_0$ als Funktion des Produktes $Q = i \cdot \Theta$. i Röhrenstrom der Röntgenröhre während der ersten Bestrahlung (Vorsensibilisierung) in μA ; Θ Dauer der Vorsensibilisierung, d.h. Dauer der gemeinsamen Wirkung von Feld und Bestrahlung (Θ in Minuten): Kurve I $Q = 640 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve II $Q = 320 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve III $Q = 160 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve IV $Q = 80 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve V $Q = 40 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve VI $Q = 20 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve VII $Q = 10 \mu\text{A} \cdot \text{min}$, Kurve VIII $Q = 5 \mu\text{A} \cdot \text{min}$

vorausgesetzt, daß die Untersuchungen mit konstanter Röhrenspannung und gleichbleibendem Abstand zwischen Leuchtstoffschicht und Röntgenröhre durchgeführt werden.

Wir bezeichnen mit i den Röhrenstrom während der ersten Bestrahlung (Vorsensibilisierungsperiode), mit Θ die Dauer der Bestrahlung und mit j den Röhrenstrom während der zweiten Bestrahlung. Die Untersuchungen zeigen, daß i und Θ in weiten Grenzen durch ihr Produkt $Q = i \cdot \Theta$ eingehen. Es genügen sehr schwache Bestrahlungen ($i = \text{einige Mikroampere}$), um einen meßbaren Effekt hervor-

zurufen. Die Kurven von Fig. 5 zeigen als Beispiel die Ergebnisse, die mit einer Vorsensibilisierung von 2 min durch einen Röntgenstrahl geringster Stärke ($i = 40 \mu\text{A}$) erhalten wurden; die zweite Bestrahlung (Stärke j) setzte nach einer Ruhezeit von 2 min ein. Die Kurven dieser Figur geben die Strahlungsstärke als Funktion der Zeit während der zweiten Bestrahlung wieder (Kurventeil $O'A'M'M''$ der Fig. 2 und 3).

Die Kurven der Fig. 6 zeigen die Änderungen des Vorsensibilisierungsfaktors r_2 für verschiedene Werte des Produktes $Q = i \cdot \Theta$ und für verschiedene Bestrahlungsstärken j während der zweiten Bestrahlung. Für mittlere Q -Werte von 40 oder $80 \mu\text{A} \cdot \text{min}$ (Kurven 4 und 5) zeigt der Vorsensibilisierungsfaktor r_2 ein Maximum für einen gewissen Wert des Stromes j . Für stärkere Werte von Q (Kurven I–II–III) steigen die

Kurven kontinuierlich an, während die Kurven für schwächere Werte von Q (V, VI, VII und VIII) kontinuierlich abnehmen.

Diese Erscheinungen legen folgende Schlüsse nahe: Unabhängig von θ geht der Faktor r_2 als Funktion der Bestrahlungsstärke j durch ein Maximum bei einem gewissen Wert j_M der Bestrahlungsstärke. Für große Werte von Q allerdings liegen diese Optimalwerte j_m bei so hohen Bestrahlungsstärken j , daß sie experimentell nicht erfaßt werden. Bei kleinen Werten von Q dagegen liegt j_m unterhalb der experimentellen Grenzen.

Erscheinungsformen des Effektes, wenn die Röntgenpulsationen gegenüber den sinusförmigen Schwankungen der Spannung phasenverschoben sind

Mit einer gebräuchlichen Anordnung kann man in jeder Halbperiode der Spannungsänderung einen Röntgenimpuls erhalten. Dafür kann entweder ein Röntgengerät verwendet werden, das mit Hilfe von 4 Gleich-

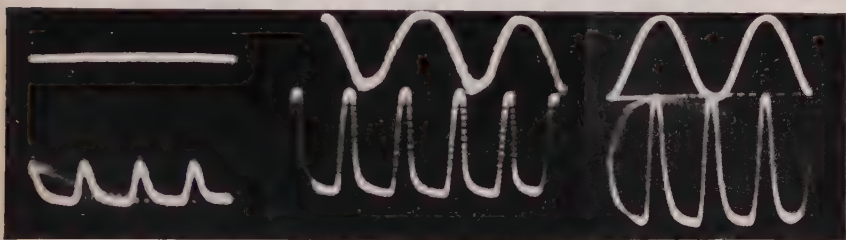


Fig. 7. Die Wirkung einer Phasenverschiebung zwischen Leuchtwellen und Spannungswellen im Feldverstärkungseffekt. *Linkes Bild*: Normale Leuchtwellen bei Anregung durch Periodische Röntgenstrahlen. *Mittleres Bild*: Verstärkungseffekt bei Phasenverschiebung zwischen Spannungswellen (obere Kurve) und Leuchtwellen. *Rechtes Bild*: Verstärkungseffekt, wenn Spannungswellen (obere Kurve) in Phase mit der Leuchtwellen. Der Effekt ist unabhängig von der Phasenlage der Leuchtwellen deutlich zu erkennen, wie ein Vergleich der Amplituden der normalen Maxima des linken Bildes mit denen der Leuchtwellen auf den beiden anderen Bildern zeigt

richten beide Halbwellen ausnützt, oder aber ein Halbwellengerät (Gleichrichtung in der Röntgenröhre), aber gespeist mit der doppelten Frequenz der an die Lumineszenzzelle gelegten Spannung. Diese letztere Lösung haben wir benutzt. Dabei werden 2 Generatoren mechanisch gekuppelt, von denen der erste die Spannung des Röntgengerätes, der zweite die Zellenspannung liefert. Der erste besitzt die doppelte Polzahl des zweiten. So erhält man einen Röntgenimpuls und damit auch einen Lichtblitz in jeder Halbperiode der an die Zelle gelegten Spannung. Durch ein Phasenschiebersystem kann die Leuchtwellen gegen die Spannungswellen verschoben werden. Die Resultate sind in den Oszillogrammen von Fig. 7 wiedergegeben.

Der Verstärkungseffekt wird sehr wenig durch eine Phasenverschiebung zwischen der Leuchtwellen und der Spannungswellen beein-

flußt. Zwar erhält man den maximalen Effekt, wenn die beiden Kurven in Phase sind, der Effekt bleibt aber fast ebenso groß, jedenfalls aber in derselben Größenordnung, wenn diese Kurven um 90° phasenverschoben sind.

Es muß allerdings dazu bemerkt werden, daß in dem letzteren Fall (Phasenverschiebung von 90° zwischen Leuchtwellen und Spannungswelle) die Maxima der Leuchtwellen dann erscheinen, wenn das Feld



Fig. 8. Phasenverschiebung zwischen Leuchtwellen und Spannungswelle bei der Feldauslöschung. Von links nach rechts: *Bild 1*: Spannungswelle (obere Kurve) und normale Leuchtwellen (untere Kurve) in Phase; es liegt keine Spannung in der Zelle. *Bild 2*: Auslöschung, wenn die Zellenspannung „in Phase“ mit der Leuchtwellen ist. *Bild 3*: Spannungswelle und normale Leuchtwellen gegeneinander phasenverschoben; an der Zelle liegt keine Spannung. *Bild 4*: Die Wirkung des Feldes, wenn die Spannungswelle gegen die Leuchtwellen phasenverschoben ist. Praktisch wird keine Auslöschung, sondern nur eine leichte Abflachung des unteren Niveaus der Leuchtwellen beobachtet, die von der Abschwächung der geringen Phosphoreszenz zwischen zwei aufeinanderfolgenden Röntgenimpulsen herrührt. Die Restphosphoreszenz erscheint in diesem Fall jedesmal dann, wenn das Feld seinen Maximalwert durchläuft. Der Auslöschungseffekt hängt also sehr von der Phasenbeziehung zwischen Leuchtwellen und Spannungswelle ab

den Nullwert passiert. Dies zeigt, daß es sich nicht um eine durch Strahlung kontrollierte Elektrolumineszenz (Destriau-Effekt) handelt. Wäre nämlich diese Hypothese richtig, so müßte man bei Phasenverschiebung der Wellen gegeneinander dann ein erstes Maximum der normalen Strahlungsstärke erhalten, wenn der Röntgenimpuls sein Maximum durchläuft und wenn die an den Kondensator gelegte Spannung Null ist. Darauf müßte eine Viertelperiode später ein zweites Sekundärmaximum der kontrollierten Elektrolumineszenz erscheinen, wenn das Feld seinen Maximalwert durchläuft und keine Röntgenanregung stattfindet. Da dies aber nicht beobachtet wird, darf angenommen werden, daß es sich bei der Feldverstärkung nicht um eine Elektrolumineszenz handelt, die durch Strahlung kontrolliert wird (Fig. 8).

Diese letztgenannten Ergebnisse unterscheiden sich vollständig von denen, die man bei der Untersuchung des umgekehrten Effektes, nämlich bei der Auslöschung erhält. Die Oszillogramme der Fig. 8 zeigen als Beispiel, wie stark in diesem Falle der Effekt von einer Phasenverschiebung zwischen Leuchtwellen und Spannungswellen beeinflußt wird. Wenn die Wellen gegeneinander phasenverschoben sind, wird kein Auslöschungseffekt beobachtet.

Zusammenfassung

Wird ein Leuchtstoff, der den Feldverstärkungseffekt zeigt, während der Anregung mit Röntgenstrahlen der Wirkung eines elektrischen Feldes ausgesetzt, so verschwindet die Sensibilisierung durch das Feld kontinuierlich nach dem Abschalten der Kondensatorspannung: Entweder schnell in einigen Zehntelsekunden, wenn die Röntgenanregung fortgesetzt wird, oder aber im Gegensatz dazu sehr langsam während mehrerer Stunden, wenn die Bestrahlung gleichzeitig mit dem Feld abgeschaltet wird. Im letzteren Fall bleibt der Leuchtstoff empfindlicher (Lumineszenz-Strahlungsstärke größer als normal), wenn er ohne jedes zusätzliche Feld einer neuen Bestrahlung ausgesetzt wird. Diese Verstärkung dauert während der ersten 10 sec der neuen Bestrahlung an. — Die Feldverstärkung wird wenig beeinflußt durch eine Phasenverschiebung zwischen der Spannungswelle und dem Röntgenimpuls.

Es scheint so, als ob diese Erscheinungen nicht in Einklang zu bringen sind mit der von CUSANO und WILLIAMS gegebenen Hypothese, nach der die Verstärkung eine Elektrolumineszenz sei, die durch Strahlung kontrolliert wird (Photoelektrolumineszenz).

Aus dem Institut für theoretische Physik der Technischen Hochschule München

Bemerkungen zur Einführung des 3-dimensionalen Ladungsraums

Von

FOLKER ENGELMANN

(Eingegangen am 15. August 1957)

Es wird gezeigt, daß die Einführung allein einer Drehsymmetrie im Ladungsraum für reelle Felder alle ladungsartigen Erhaltungsgrößen festlegt und die Ganzzahligkeit der Ladung liefert. Dagegen ist bei komplexen Feldern zusätzlich das Transformationsverhalten gegenüber „Eichtransformationen“ offen und die Ganzzahligkeit der Ladung ist eine Zusatzforderung. Weiter wird darauf hingewiesen, daß die Einführung des Ladungsspins mit einer Plusquantisierung von Klein-Gordon-Feldern inkonsistent ist.

Zur Beschreibung der Ladungsmultipletts hat sich die Einführung eines 3-dimensionalen Ladungsraums (Isoraum) als geeignet erwiesen [1]. Hierbei wird den Feldfunktionen außer dem üblichen Transformationsverhalten im Lorentz-Raum auch ein solches im Ladungsraum zugeordnet. Liegt ein ladungsunabhängiges Problem vor, dann läßt sich im Ladungsraum Drehsymmetrie fordern. Diese Sachlage hat man z.B. für alle freien Felder, d.h. für die nullte Näherung, die der Betrachtung aller Wechselwirkungsprobleme zugrunde liegt.

Für das Folgende seien über die Drehinvarianz hinaus keine weiteren Symmetrieforderungen im Ladungsraum gestellt. Dann folgt für ein freies Ladungsmultiplett ψ mit den $2t+1$ Komponenten $\psi^{(e)}$ bezüglich einer orthogonalen Basis in einem an den Ladungsraum gekoppelten Vektorraum, das sich bei Drehungen des Ladungsraums nach einer irreduziblen Darstellung \mathfrak{D}^t der 3-dimensionalen Drehgruppe transformiert, bei Zugrundelegung einer von $\psi^{(e)}$, $\psi^{(e)*}$, $\frac{\partial \psi^{(e)}}{\partial x_\mu}$, $\frac{\partial \psi^{(e)*}}{\partial x_\mu}$ abhängigen * Lagrange-Dichte ein Erhaltungssatz für den Ladungsraumvektor

$$\mathfrak{L} = \frac{1}{\hbar} \int_V (\pi \mathfrak{D} \psi - \psi^* \mathfrak{D} \pi^*) d\tau \quad (1)$$

(Ladungsspin). \mathfrak{D} bedeutet dabei die infinitesimalen Transformationsmatrizen $I^{(1)}$, $I^{(2)}$, $I^{(3)}$ der Darstellung \mathfrak{D}^t , π und π^* die zu ψ und ψ^*

* Durch den Stern (*) wird bei Zahlen und Funktionen das konjugiert Komplexe, bei Matrizen das hermitisch Konjugierte bezeichnet.

konjugierten Feldfunktionen. Bei reellen Feldern, für die der Satz der Teilchen mit dem der Antiteilchen identisch ist, gilt (1) unter Berücksichtigung von $\pi^* = 0$. Mit der Vertauschungsrelation

$$\mathfrak{S} \times \mathfrak{S} = \mathfrak{S}^* \quad (2)$$

folgt für Klein-Gordon-Felder bei Minusquantisierung, für Dirac-Felder bei Plusquantisierung als Vertauschungsrelation der Komponenten des Ladungsspins allgemein

$$\mathfrak{I} \times \mathfrak{I} = i \mathfrak{I}. \quad (3)$$

Für komplexe Felder besteht neben der Drehinvarianz weiter Invarianz gegen die Eichtransformation $\psi \rightarrow \psi e^{i\gamma}$, $\psi^* \rightarrow \psi^* e^{-i\gamma}$. Hierbei handelt es sich im Prinzip um Drehungen in den durch $\psi^{(e)}$ und $\psi^{(e)*}$ aufgespannten 2-dimensionalen Vektorräumen. Das Feld ψ läßt sich demnach weiterhin charakterisieren durch die irreduzible Darstellung $\Gamma = e^{im\varphi}$ festlegende Zahl m (ganz, $\neq 0$), mit der es sich bei diesen 2-dimensionalen Drehungen transformiert. Die aus der zugehörigen Invarianz folgende Erhaltungsgröße ist ein Lorentz- und Ladungsraumskalar und lautet

$$W = -\frac{i}{\hbar} m \int_V (\pi \psi - \psi^* \pi^*) d\tau. \quad (4)$$

Sie läßt sich auf reelle Felder erweitern, da das Nichtbestehen der Eichinvarianz durch

$$m = 0 \quad (5)$$

beschrieben wird. In W werden gerade Teilchen und Antiteilchen unterschieden, was man am besten im Impulsraum übersieht, wo man mit den üblichen Bezeichnungen $\star\star$ bis auf eine unwesentliche unendliche Konstante

$$W = m \sum_{\kappa, q} (a_{(\kappa)}^{(q)*} a_{(\kappa)}^{(q)} - b_{(\kappa)}^{(q)*} b_{(\kappa)}^{(q)}) \quad (6)$$

erhält. Die Summation κ läuft dabei über alle Impulse und Spinrichtungen.

Es besteht nun die Möglichkeit, nicht nur *eine* solche Eichtransformation bzw. Drehung, sondern unabhängig voneinander mehrere zu betrachten, bei denen sich ψ dann nach verschiedenen Darstellungen

* Siehe z.B. [2].

$\star\star$ $a_{(\kappa)}^{(q)}$ sind die zu positiven Frequenzen, $b_{(\kappa)}^{(q)*}$ die zu negativen Frequenzen gehörigen Entwicklungskoeffizienten von $\psi^{(q)}$. Das a -Feld beschreibt die Teilchen, das b -Feld die Antiteilchen des Gesamtfeldes.

I_α transformieren kann. Man erhält so eine entsprechende Anzahl von Erhaltungsgrößen W_α der Form (4) bzw. (6) mit durch das jeweilige Transformationsverhalten gegebenen Faktoren m_α . Für ein einziges Ladungsmultiplett sind diese Erhaltungsgrößen alle einander proportional, bei der gleichzeitigen Betrachtung mehrerer Multipletts gilt dies jedoch nicht mehr und man hat unabhängige Erhaltungssätze. Für reelle Felder gilt dann analog zu (5)

$$\text{alle } m_\alpha = 0, \quad (5a)$$

während die Eichinvarianz komplexer Felder nun nur noch bedeutet, daß hier wenigstens *ein* m_α von 0 verschieden ist. Erhaltungsgrößen der Art W_α sind die Hyperladung U , Barionenzahl (Nukleonladung) N , Strangeness S und Fermionenzahl F , wobei die Strangeness nicht unabhängig, sondern durch

$$S = U - N \quad (7)$$

definiert ist. Hyperladung und Ladungsspin bestimmen definitionsgemäß die Ladung Q durch

$$Q = T^{(3)} + \frac{U}{2}. \quad (8)$$

Alle Erhaltungsgrößen sind somit bestimmt, wenn das Transformationsverhalten einer Feldfunktion für alle Symmetrieoperationen gegeben ist. Speziell liefert die Realität eines Feldes wegen (5a) und (6) unmittelbar das Verschwinden von Hyperladung, Barionenzahl, Fermionenzahl und Strangeness.

Aus (8) folgt, daß die Ganzzahligkeit der Ladung Q verlangt, daß für

$$t \left\{ \begin{array}{l} = \text{ganzzahlig} \\ = \text{halbzahlig} \end{array} \right. \quad m_U \left\{ \begin{array}{l} = \text{gerade} \\ = \text{ungerade} \end{array} \right. \quad (9)$$

sein muß. Es ist also eine bestimmte Beziehung zwischen den physikalisch zulässigen Transformationsverhalten gegenüber Drehungen im Ladungsraum und bei der Hyperladungs-Eichtransformation zu fordern. Nur für reelle Felder ist sie von selbst erfüllt, da reelle Felder sich nur nach eindeutigen Darstellungen \mathfrak{D}^t (t ganzzahlig) transformieren können, weil die Matrizen nur dieser Darstellungen auf eine reelle Form gebracht werden können*. Umgekehrt ergibt diese Tatsache auch, daß sich nach zweideutigen Darstellungen \mathfrak{D}^t (t halbzahlig) transformierende

* Dies läßt sich nachweisen, indem man untersucht, für welche Darstellungen es möglich ist, eine Basis zu finden, die sich wie die konjugiert komplexe Basis transformiert.

Felder immer komplex, also eichinvariant sind, so daß sicher eine Erhaltungsgröße vom Typ (4) bzw. (6) existiert. HANAWA [3] hat im Anschluß an RACAH [4] und basierend auf der Einführung einer Parität im Ladungsraum durch D'ESPAGNAT und PRENTKI [1], [5] allgemein einen Zusammenhang zwischen dieser Parität und dem Transformationsverhalten bei Hyperladungs-Eichtransformation definiert. Die Werte für m_U folgen danach gemäß $m_U = \frac{2}{i\pi} \ln P$ aus der Parität P des Feldes im Ladungsraum. Dann ist die Einschränkung (9) für m_U damit äquivalent, daß nur Felder zugelassen werden dürfen, die sich im Ladungsraum wie Produkte von Spinoren mit den Paritäten i und $-i$ transformieren. Der Schluß versagt jedoch für reelle Felder, für die neben gerader auch ungerade Parität vorkommen kann, aber keine Eichtransformation möglich ist. Die Einführung einer Parität im Ladungsraum liefert daher nicht die vollständige Begründung der Beziehung (9) und erscheint hinsichtlich reeller Felder nicht zweckmäßig.

Die Barionenzahl wird festgelegt durch $m_N = 1$ für alle Nukleonen und Hyperonen, dagegen $m_N = 0$ für alle übrigen Teilchen. Entsprechend wählt man für die Fermionenzahl $m_F = 1$ für alle Fermiteilchen, dagegen $m_F = 0$ für alle Bosonen [6].

Da die angestellten Überlegungen sich auf freie Felder beziehen, braucht man auch die leichten Teilchen, bei denen ladungsunabhängige Wechselwirkungen nicht vorkommen, aus der Betrachtung nicht auszuschließen. Sie lassen sich als Ladungssingulets auffassen mit $m_U = 0$ für neutrale (γ, ν) bzw. $m_U = \pm 2$ für geladene Leptonen (e, μ)^{*}. Die Bedeutung gerade der betrachteten Invarianzen und zugehörigen Erhaltungssätze liegt dagegen in der Tatsache, daß sie auch bei Einführung von Wechselwirkungen in bekannter Weise [8], [6] ganz oder teilweise gültig bleiben.

Schließlich sei noch darauf hingewiesen, daß bei Feldern mit nicht verschwindendem Ladungsspin die bekannte Unmöglichkeit [9] einer Quantisierung von Klein-Gordon-Feldern mit Plusvertauschungsrelationen einfach einzusehen ist. Die Eigenschaft (3) würde dann nämlich

$$\left. \begin{aligned} & [\pi^{(e)}(x), \quad \psi^{(e')}(x')]_+ = -\frac{\hbar}{i} \delta(x-x') \delta^{(e e')} \\ \text{bzw.} \quad & [\pi^{(e)*}(x), \quad \psi^{(e')*}(x')]_+ = \frac{\hbar}{i} \delta(x-x') \delta^{(e e')} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

erfordern, was für die Entwicklungskoeffizienten im Impulsraum

$$[a_{(x)}^{(e)} a_{(x')}^{(e')*}]_+ = \delta_{(xx')} \delta^{(e e')} \quad \text{und} \quad [b_{(x)}^{(e)} b_{(x')}^{(e')*}]_+ = -\delta_{(xx')} \delta^{(e e')} \quad (11)$$

^{*} Vgl. z. B. [7].

bedeutet. Die zweite dieser Beziehungen ist aber für gleiche Indizes unerfüllbar, da die Summe zweier Operatoren mit positiven Eigenwerten $bb^* + b^*b$ nicht gleich der negativen Einheitsmatrix sein kann. Ein entsprechender Schluß ist auch bei Feldern mit nicht verschwindendem Spin möglich.

Herrn Dr. E. FICK und Herrn Dr. W. WILD danke ich für Hinweise und Diskussionen.

Literatur

- [1] D'ESPAGNAT, B., and J. PRENTKI: Nuclear Phys. **1**, 33 (1956). — [2] VAN DER WAERDEN, B. L.: Die gruppentheoretische Methode in der Quantenmechanik, S. 62ff. Berlin 1932. — [3] HANAWA, S.: Progr. Theor. Phys. **17**, 592 (1957). — [4] RACAH, G.: Nuclear Phys. **1**, 302 (1956). — [5] D'ESPAGNAT, B., and J. PRENTKI: Phys. Rev. **102**, 1684 (1956). — [6] SELDOWITSCH, J. B.: Fortschr. Phys. **5**, 70 (1957). — [7] ROMÁN, P.: Nuclear Phys. **2**, 651 (1956/57). — [8] NISHIJIMA, K.: Fortschr. Phys. **4**, 519 (1956). — [9] PAULI, W.: Phys. Rev. **58**, 716 (1940).

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Relativmessung integrierter Wirkungsquerschnitte für den Kernphotoeffekt: Die Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$

Von

P. BRIX*, U. HEGEL, K. H. LINDENBERGER und D. QUITMANN*

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 7. Dezember 1957)

Das bei der Bestrahlung von Ca mit der Bremsstrahlung eines Betatrons aus dem Ca^{44} entstehende K^{43} wurde mit einem Szintillations- γ -Spektrometer identifiziert. Aus einer Relativmessung gegen die gut bekannte $\text{C}^{12}(\gamma, n)$ -Reaktion ergab sich der über die γ -Energie E bis 34 MeV integrierte Wirkungsquerschnitt zu (125 ± 25) MeVmb. Die Auswertung beruht darauf, daß sich aus den Spektren der durch 18 mm Blei gefilterten und der ungefilterten Betatronstrahlung ein Differenzspektrum erzeugen läßt, für das im interessierenden Energiebereich die Zahl der γ -Quanten je Energieintervall ungefähr konstant ist. Durch Linearkombinationen mit anderen Konstanten lassen sich außerdem Spektren annähern, die proportional zu $1/E$ oder $1/E^2$ sind. Diese eignen sich für Relativmessungen der Integrale über σ/E und σ/E^2 .

I. Einleitung

Bei der theoretischen Behandlung des Kernphotoeffektes lassen sich die Integrale

$$\sigma_{\text{int}} = \int \sigma dE; \quad \sigma_{-1} = \int (\sigma/E) dE; \quad \sigma_{-2} = \int (\sigma/E^2) dE \quad (1)$$

und die daraus ableitbaren Energien $\sigma_{\text{int}}/\sigma_{-1}$; $\sqrt{\sigma_{\text{int}}/\sigma_{-2}}$ und σ_{-1}/σ_{-2} besonders einfach interpretieren (siehe z. B. [17] und die dort angegebene Literatur). Dabei ist $\sigma(E)$ der Wirkungsquerschnitt für die γ -Absorption eines Atomkernes in Abhängigkeit von der Quantenenergie E . Experimentell müssen normalerweise die Integrale für die Teilprozesse (γ, n) , (γ, p) usw. einzeln bestimmt werden.

In Teil II der vorliegenden Arbeit wird eine einfache Methode beschrieben, mit der sich für zwei Kernphotoprozesse der Quotient solcher Integrale in guter Näherung mit der Bremsstrahlung eines Elektronenbeschleunigers messen läßt. Zunächst wird dabei die Ausbeute $Y = \int \sigma S dE$ der einen Reaktion relativ zur Ausbeute der anderen Reaktion bestimmt; dabei bezeichnet S das Bremsstrahlspektrum, dessen Maximalenergie E_0 mindestens 30 MeV sein sollte. Als zweites wird bei demselben E_0 gemessen, wie stark die für die Kernphotoreaktionen verantwortliche γ -Strahlung durch einen Bleiabsorber geschwächt wird

* Jetzt: Institut für Technische Kernphysik der Technischen Hochschule Darmstadt.

Wegen der Energieabhängigkeit der γ -Absorption in Blei erhält man daraus eine Information über die Quantenenergie der die Prozesse auslösenden γ -Strahlung; diese reicht, wie in Teil II gezeigt wird, in den meisten Fällen aus, um die Relativwerte der drei Integrale (1) in guter Näherung aus den relativen Ausbeuten zu berechnen, ohne daß über die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte spezielle Annahmen nötig sind. Selbstverständlich ist das skizzierte Verfahren kein Ersatz für die Messung von $\sigma(E)$ etwa mit Hilfe der Photonendifferenzmethode; wir glauben aber, daß es aus folgenden Gründen gelegentlich von Nutzen sein könnte:

1. Für diejenigen Kernphotoprozesse, bei denen sich die Photonendifferenzmethode aus Intensitätsgründen verbietet, ist es ein Gewinn, wenn außer der üblicherweise angegebenen Ausbeute noch die besser interpretierbaren integrierten Wirkungsquerschnitte ausgewertet werden können. Als Beispiel legen wir in Abschnitt III eine Messung der Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$ (relativ zu $\text{C}^{12}(\gamma, n)\text{C}^{11}$) vor*, deren Wirkungsquerschnitt bisher unbekannt war. Das Ca^{44} hat nur 2% relative Isotopenhäufigkeit. Die Halbwertszeit des K^{43} ist mit 22,4 Std unbequem lang. Unsere Messungen wurden ferner mit einem Betatron durchgeführt, das sich zu dieser Zeit noch in einem provisorischen Zustand befand und deshalb nur einen Bruchteil der endgültigen γ -Intensität lieferte.

2. Das Bremsspektrum S und die Grenzenergie E_0 müssen nur bei einer einzigen Einstellung des Beschleunigers annähernd bekannt sein; dieses Kenntnis kann zudem durch eine Eichmessung an geeigneten Reaktionen gewonnen werden. Auf diese Weise sollten sich genaue Relativmessungen der Integrale (1), die nicht mit den Unsicherheiten der Photonendifferenzmethode behaftet sind, einfach durchführen lassen. Über derartige Messungen an reinen Positronenstrahlern, für die sich die relativen Ausbeuten bequem über die Vernichtungsstrahlung mit einem γ -Szintillationsspektrometer bestimmen lassen, soll demnächst in anderem Zusammenhang berichtet werden.

Vorwegnehmen möchten wir das Ergebnis einer Eichmessung mit den Reaktionen $\text{C}^{12}(\gamma, n)\text{C}^{11}$ und $\text{Cu}^{63}(\gamma, n)\text{Cu}^{62}$, deren gut bekannte Wirkungsquerschnitte sich in ihrer Energieabhängigkeit stark unterscheiden und die auf reine Positronenstrahler führen: Innerhalb der Unsicherheiten der Literaturwerte (Zitate s. Fig. 2) fanden wir, daß der Quotient der Ausbeuten bei $E_0 = 32$ MeV mit dem für ein Schiffspektrum berechneten übereinstimmt und daß der daraus nach Teil II ausgewertete Quotient der integrierten Wirkungsquerschnitte $\int \sigma dE$ richtig wird.

* Bereits auszugsweise vorgetragen am 3. September 1956 auf dem Deutschen Physikertag in München [Phys. Verh. 7, 115 (1956)].

II. Relativmessung integrierter Wirkungsquerschnitte

Die Zahl der Kernphotoprozesse, die durch Bremsstrahlung erzeugt werden, ist proportional dem von der Schwellenenergie E_t bis zur Grenzenergie E_0 integrierten Produkt aus dem Wirkungsquerschnitt $\sigma(E)$ und dem Spektrum $S(E, E_0)$ *:

$$Y(E_0) = \int_{E_t}^{E_0} \sigma(E) S(E, E_0) dE. \quad (2)$$

Die Einschaltung eines Absorbers mit der Dicke x_0 und einer Absorptionskonstanten $\mu(E)$ in den Strahl ergibt ein modifiziertes Spektrum $T(E) \cdot S(E, E_0)$ und reduziert die Zahl der Kernphotoprozesse verglichen mit (2) auf den Wert:

$$\left. \begin{aligned} D(E_0) Y(E_0) &= \int_{E_t}^{E_0} \sigma(E) T(E) S(E, E_0) dE \\ \text{mit} \quad T(E) &= \exp(-\mu(E) x_0). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Fig. 1 erläutert am Beispiel eines 35 MeV-Schiffspektrums und eines Bleiabsorbers mit $x_0 = 20,5 \text{ g cm}^2$, daß es für Absorber mit hohem Z möglich ist, aus den Spektren $S(E)$ und $T(E) \cdot S(E)$ ein Differenzspektrum ($\alpha_0 S - T S$) zu bilden, das zwischen 14 und 28 MeV γ -Energie annähernd konstant ist; die empirisch zu bestimmende Konstante α_0 hängt von x_0 , aber kaum von E_0 ab und hat für das Beispiel von Fig. 1 den Wert 0,345. In der Näherung, in der diese Konstanz erfüllt ist, gilt dann für zwei Kernprozesse a und b :

$$\frac{\int_{E_1}^{E_2} \sigma_a dE}{\int_{E_1}^{E_2} \sigma_b dE} \approx \frac{\int_{E_t}^{E_0} \sigma_a (\alpha_0 S - T S) dE}{\int_{E_t}^{E_0} \sigma_b (\alpha_0 S - T S) dE} = \frac{Y_a}{Y_b} \cdot \frac{\alpha_0 - D_a}{\alpha_0 - D_b}. \quad (4)$$

Aus einer Messung von Y_a/Y_b , D_a und D_b läßt sich demnach das Verhältnis der integrierten Wirkungsquerschnitte berechnen.

Für die in Fig. 2 gezeichneten typischen Wirkungsquerschnitte von Kernphotoprozessen kann auf der linken Seite von (4) die Grenze E_1 durch die Schwellenenergie E_t und E_2 durch $E_0 - 1 \text{ MeV}$ ersetzt werden. Das wird durch eine Kontrollrechnung belegt, deren Ergebnisse in Tabelle 1 dargestellt sind: Y und D wurden für Schiffspektren mit $E_0 = 35 \text{ MeV}$ und 30 MeV berechnet und die gefundenen Werte in die rechte Seite von Gl. (4) eingesetzt. Als Reaktion b diente dabei stets $\text{Cu}^{63}(\gamma, n)\text{Cu}^{62}$, als Reaktion a jeweils eine der drei übrigen. Die sich

* $S(E, E_0)$ gibt die Zahl der γ -Quanten je Energieintervall an; die absolute Normierung von S interessiert nicht, da im folgenden nur Verhältnisse benutzt werden, die zu gleichen $S(E, E_0)$ gehören.

ergebenden Zahlenwerte müssen mit den exakten Verhältnissen der integrierten Wirkungsquerschnitte verglichen werden. Das Resultat des Vergleiches zeigt die oberste Zeile in Tabelle 1. Man sieht, daß für $E_0 = 35$ MeV die Fehler sehr klein sind und daß sogar für $E_0 = 30$ MeV dasselbe α_0 noch brauchbare Ergebnisse liefert. Eine Anwendung der

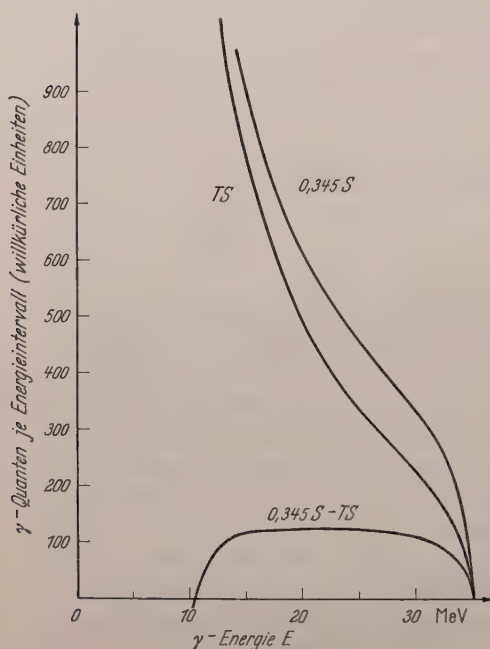


Fig. 1

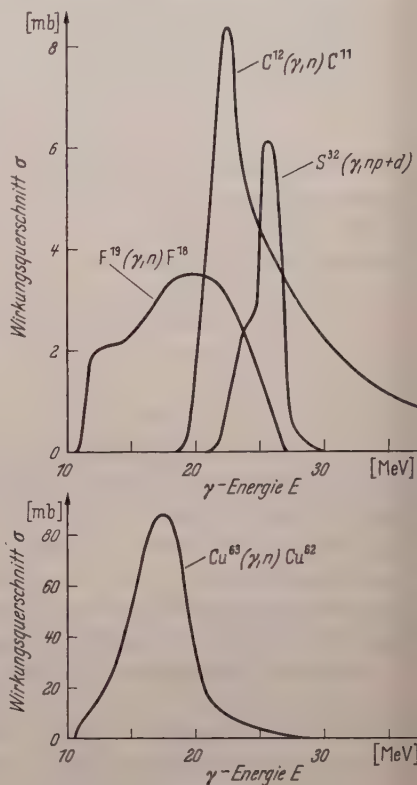


Fig. 2

Fig. 1. Herstellung eines Differenzspektrums mit annähernd konstanter Quantenzahl je Energieintervall. TS ist ein 35-MeV-Schiffspektrum hinter $x_0 = 20,5$ g/cm² Blei. Für das in $T = \exp(-\mu x_0)$ benutzte $\mu(E)$ wurde zu den bei SIEGBAHN [28] tabellierten Werten eine nach den Angaben von MONTALBETTI, KATZ und GOLDBERG [22] abgeschätzte Kernabsorption addiert. Die mit 0,345 S bezeichnete Kurve zeigt das mit einem Faktor 0,345 multiplizierte ursprüngliche Spektrum, die Konstante 0,345 wurde empirisch so bestimmt, daß $(0,345 S - TS)$ zwischen 14 MeV und 28 MeV annähernd konstant ist

Fig. 2. Einige typische Kernphotoeffekt-Wirkungsquerschnitte. Für die in der Figur dargestellten Wirkungsquerschnitte wurde die im Text erläuterte Kontrollrechnung durchgeführt, deren Ergebnisse in Tabelle 1 gegeben werden. Literatur: zu $C^{12}(\gamma, n)C^{11}$: [3]; zu $F^{19}(\gamma, n)F^{18}$: [10]; zu $S^{32}(\gamma, np+d)P^{30}$: [16] und [15]; zu $Cu^{63}(\gamma, n)Cu^{62}$: Mittelwert [5] und [27]

Methode und dieselbe Wahl der Integrationsgrenzen erscheint also in solchen Fällen gerechtfertigt, in denen man annehmen kann, daß der Wirkungsquerschnitt der beteiligten Reaktionen nicht allzusehr von den in Fig. 2 gegebenen Beispielen abweicht. Einen Hinweis, wieweit dies der Fall ist, liefert jeweils D , aus dem sich die mittlere Energie

Tabelle 1. Ergebnisse der Kontrollrechnung

E_0 Prozeß am:	35 MeV			30 MeV		
	C	F	S	C	F	S
$\int \sigma_a dE / \int \sigma_{Cu} dE$	+ 1 %	0 %	+ 3 %	- 2 %	- 1 %	- 6 %
$\int (\sigma_a/E) dE / \int (\sigma_{Cu}/E) dE$	0 %	0 %	+ 2 %	- 5 %	- 1 %	- 7 %
$\int (\sigma_a/E^2) dE / \int (\sigma_{Cu}/E^2) dE$	0 %	0 %	+ 2 %	- 3 %	- 1 %	- 7 %

Die oberste Zeile der linken Hälfte gibt den prozentualen Fehler der Näherungsformel (4) an, wenn Y und D für ein Schiffspektrum mit $E_0 = 35$ MeV berechnet werden. Als Reaktion a ist jeweils einer der in Fig. 2 dargestellten Prozesse an C, F oder S, als Reaktion b der Prozeß an Cu angenommen. Für E_1 ist die Schwellenenergie E_i , für E_2 die Energie $E_0 - 1$ MeV gesetzt. Dabei ist diese Festlegung von E_2 belanglos, wenn der Wirkungsquerschnitt bereits unterhalb $E_0 - 1$ MeV vernachlässigbar klein wird, wie dies z.B. bei den Reaktionen an Cu, F und S der Fall ist. Die rechte Hälfte der oberen Zeile gibt die entsprechenden Werte, wenn ohne Änderung der Konstanten $\alpha_0 = 0,345$ und unter Beibehaltung von $E_2 = E_0 - 1$ MeV ein Schiffspektrum mit $E_0 = 30$ MeV benutzt wird. — Die beiden übrigen Zeilen geben die Ergebnisse analoger Rechnungen für $\int (\sigma/E) dE$ und $\int (\sigma/E^2) dE$. Konstanten: $\alpha_{-1} = 0,525$; $\alpha_{-2} = 0,120$. Integrationsgrenzen wie bei $\int \sigma dE$.

der den Prozeß auslösen den Quanten abschätzen läßt. Die Kontrollrechnung erfaßt naturgemäß nur die prinzipiellen Fehler der Methode, zu denen in der Anwendung noch die Meßfehler von Y_a/Y_b , D_a und D_b hinzutreten.

Andere Linearkombinationen von S und TS , bei denen die Zahl der Quanten je Energieintervall ungefähr proportional $1/E$ bzw. $1/E^2$ ist, können zur Bestimmung der Integrale $\int (\sigma/E) dE$ und $\int (\sigma/E^2) dE$ benutzt werden. Für ein Schiffspektrum mit $E_0 = 35$ MeV und einen Bleiabsorber mit $\kappa_0 = 20,5$ g/cm² Dicke geben die Kombinationen $(0,525 S - TS)$ bzw. $(TS - 0,120 S)$ den

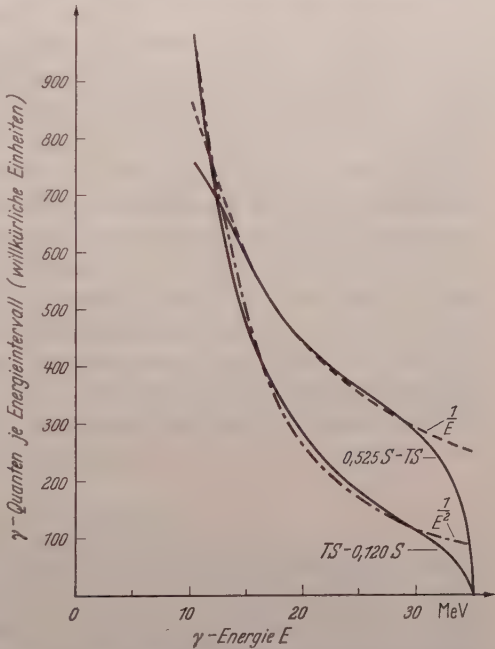


Fig. 3. Herstellung eines Spektrums, in dem die Zahl der γ -Quanten je Energieintervall annähernd proportional zu $1/E$ bzw. $1/E^2$ ist. Dargestellt sind die Differenzspektren $(0,525 S - TS)$ und $(TS - 0,120 S)$, zum Vergleich außerdem die jeweils bei 28 MeV normierten Funktionen $1/E$ und $1/E^2$. Ordinatenmaßstab wie in Fig. 1

gewünschten Verlauf. Diese Differenzspektren sind in Fig. 3 zusammen mit den Funktionen $1/E$ und $1/E^2$ dargestellt; man erkennt eine recht gute Übereinstimmung. Für den Vergleich zweier Reaktionen erhält man Formeln, die der Gl. (4) entsprechen. Mit diesen wurde eine der oben besprochenen analoge Kontrollrechnung durchgeführt, deren Ergebnisse in den beiden unteren Zeilen von Tabelle 1 aufgeführt sind. Auch hier liefert die Methode bei Berücksichtigung der für (4) angegebenen Einschränkungen zufriedenstellende Resultate.

III. Die Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$

1. Vorbemerkung

Die Absorption eines γ -Quants durch einen Kern in dem Energiebereich der Riesenresonanz hat vorzugsweise die Emission eines einzelnen Neutrons oder Protons zur Folge. Im Falle des Ca^{40} -Kernes ist dabei die Ausbeute an Photoprotonen um ein Mehrfaches größer als die an Photoneutronen [13]. Das ist verständlich, da für diesen neutronenarmen Kern die Bindungsenergie des Neutrons um 7,7 MeV über der des Protons liegt, und auch der die Emission von Protonen behindernde Coulomb-Wall diese Differenz nicht aufzuheben vermag. Am A^{40} , bei dem die (γ, n) -Schwelle 2,2 MeV niedriger als die (γ, p) -Schwelle liegt, haben überraschenderweise MCPHERSON, PEDERSON und KATZ [21] ebenfalls einen absolut und relativ zum (γ, n) -Prozeß ungewöhnlich großen (γ, p) -Wirkungsquerschnitt gefunden. Daher erschien es von Interesse, den (γ, p) -Prozeß auch am Ca^{44} zu untersuchen, das ähnliche Bindungsenergien wie das A^{40} hat und für das zudem der (γ, n) -Wirkungsquerschnitt von GOLDEMBERG und KATZ [8] abgeschätzt worden ist*.

Die Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)$ führt auf das K^{43} , einen β^- -Strahler von 22,4 Std Halbwertszeit. Sie ist zuerst von JOYET [14] durch chemische Abtrennung des Kaliums und β -Zählung nachgewiesen worden. In der vorliegenden Arbeit haben wir das K^{43} an seinen charakteristischen γ -Linien identifiziert. Ausbeute und integrierter Wirkungsquerschnitt, die einen Schluß darauf zulassen, ob die Photoprotonenemission auch beim Ca^{44} anomal häufig ist, waren bisher nicht bekannt.

2. Experimentelle Anordnung

Den Aufbau der Bestrahlungsanordnung zeigt Fig. 4. Die Verwendung des Bleiabsorbers im γ -Strahl erfordert eine gute Strahlkollimation, um die Zahl der Quanten, die im Absorber einen Compton-Prozeß machen und trotzdem noch die Probe erreichen können, vernachlässigbar klein zu halten. Das Betatron** war auf $E_0 = 32$ MeV eingestellt.

* Vgl. zu diesem Absatz die Tabelle 2 am Schluß der Arbeit.

** 35 MeV-Betatron der Siemens-Reiniger Werke AG.

Die Bremsstrahlintensitäten bei den einzelnen Versuchen wurden über die C^{11} -Zählraten jedesmal mitbestrahlter Polystyrolscheiben (vgl. Fig. 4) aneinander angeschlossen. Für diese Messungen haben sich Methandurchflußzähler bewährt. Der zeitliche Verlauf der Intensität während einer Bestrahlung wurde durch eine Ionisationskammer verfolgt.

Als Probe dienten jeweils etwa 50 g $CaCO_3^*$ im natürlichen Isotopengemisch. Dadurch ließ sich Y_{Ca}/Y_C an ein und derselben Probe

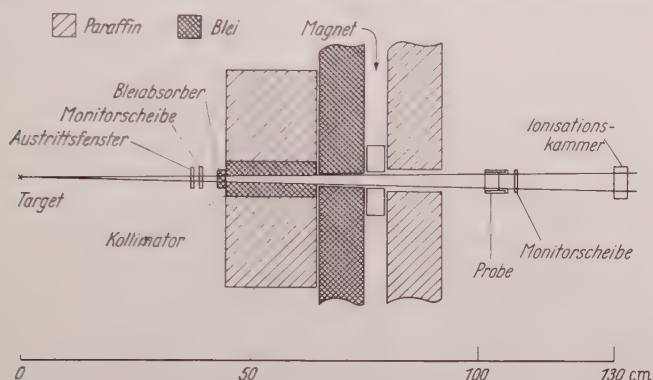


Fig. 4. Bestrahlungsanordnung. Austrittsfenster: Glas; 4 mm dick. Monitorscheiben: Polystyrol; 4,3 mm dick; 47,5 mm Durchmesser. Bleiabsorber: 20,5 g/cm²; 40 mm Durchmesser

messen. Die Aktivität der Probe wurde mit einem Szintillations- γ -Spektrometer gemessen. Der Detektor war ein NaJ(Tl)-Kristall von 1 $\frac{1}{2}$ '' Durchmesser und 1'', später 2'' Höhe auf einem Dumont-Multiplier, Typ 6292. Bei den ersten Experimenten wurde ein Proportionalverstärker Modell 100 [6] und ein Einkanaldiskriminator [12] benutzt, später ein kommerzieller Impulshöhenanalysator [11]**. Die Ca-Probe war bei 3,8 cm Durchmesser 3,2 cm hoch und befand sich zur Messung in einem Polystyroltöpfchen mit β -dicken Wänden, das zentriert so auf das Multipliergehäuse aufgesetzt war, daß sich die Bodenfläche der Probe 11 mm über der Kristalloberseite befand.

3. Ergebnisse

a) γ -Spektren und Halbwertszeiten. Beispiele für Spektren, die in der beschriebenen Anordnung gemessen wurden, zeigen Fig. 5 c und d. Für die Berechnung der Zählrate $\dot{z}(0)$ bei Bestrahlungsende aus den registrierten Impulszahlen wurden folgende Halbwertszeiten benutzt: 20,26 min für C^{11} ([3]) und 22,4 Std für K^{43} ([1], [14], [19], [23], [26]).

* Firma Merck; p. a.-Substanz.

** Hersteller Sunvic, Ltd., Modell Ia.

Fig. 6 zeigt, daß bei unseren Messungen der Abfall der Aktivität in den K^{43} -Linien mit einer Halbwertszeit von 22,4 Std übereinstimmt, wenn die im Anhang in den Absätzen c und d beschriebenen Störaktivitäten abgezogen werden.

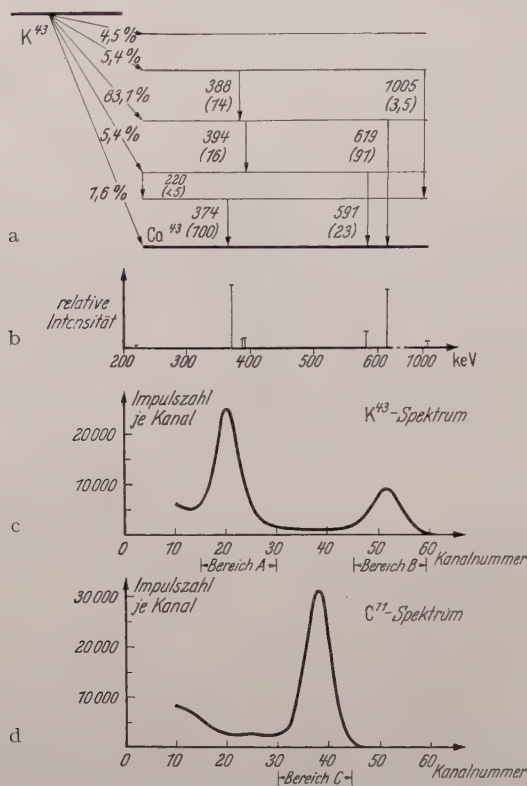


Fig. 5a—d. K^{43} -Zerfall und gemessene Spektren. a K^{43} -Zerfallsschema. Für die β -Komponenten ist die Häufigkeit pro Zerfall nach einer Arbeit von LINDQVIST und MITCHELL [19] eingetragen. Für die γ -Linien sind Energie in keV und relative Häufigkeit, bezogen auf die 374 keV-Linie, nach BENCZER-KOLLER, SCHWARZSCHILD und WU [4] angegeben. Die Energien der beiden stärksten γ -Linien sind den Messungen von BÄCKSTRÖM und LINDQVIST [2] entnommen. b γ -Spektrum des K^{43} -Zerfalls. c Gemessenes K^{43} -Spektrum. Die $CaCO_3$ -Probe wurde bei diesem Versuch nicht in der Geometrie der Fig. 4 bestrahlt, sondern befand sich direkt vor dem Austrittsfenster des Betatrons. Die Abszisse gibt die Kanalnummern des Impulshöhenanalysators an, wobei wegen einer Vorspannung des Analysators Kanal 0 nicht der γ -Energie 0 entspricht. Die Ordinate gibt die Zahl der zwischen 333 und 1089 min nach Bestrahlungsende je Kanal gezählten Impulse. Die im Text und in Fig. 6 erwähnten Spektrumsbereiche sind eingezeichnet. d Spektrum der Vernichtungsstrahlung des C^{11} aus derselben $CaCO_3$ -Probe und vom selben Versuch wie bei c. Zählintervall 16 bis 34 min nach Bestrahlungsende. Das K^{43} -Spektrum ist abgezogen.

b) *Relative Ausbeute* Y_{Ca}/Y_C . Der Quotient der Zählraten bei Bestrahlungsende ist mit dem gesuchten Verhältnis der Ausbeuten durch die Beziehung verknüpft:

$$\dot{z}_{Ca}(0)/\dot{z}_C(0) = (N_{Ca}/N_C) (I_{Ca}/I_C) (W_{Ca}/W_C) \cdot (Y_{Ca}/Y_C). \quad (5)$$

Als Indizes sind der Einfachheit halber die Ausgangselemente angegeben. Die Bezeichnungen werden in den folgenden Absätzen erläutert.

$N_{\text{Ca}}/N_{\text{C}}$ ist das Verhältnis der Zahl der Ca^{44} - zur Zahl der C^{12} -Kerne in der Probe. Für das C^{12} wurde eine relative Isotopenhäufigkeit von 98,89% [25], für das Ca^{44} von 2,10% (Mittel aus [24] und [32]) zugrunde gelegt.

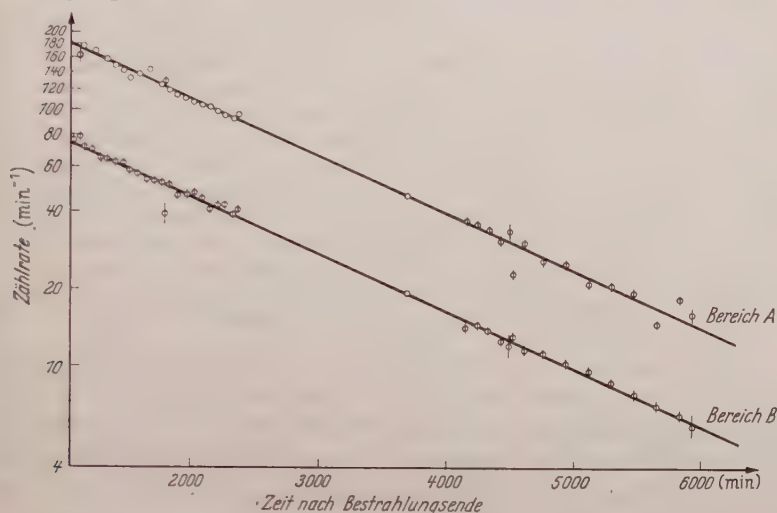


Fig. 6. Abfallkurve der K^{43} -Aktivität. Aufgetragen sind die Zählraten in den in Fig. 5c mit A und B bezeichneten Spektrumsbereichen. Die Gerade wurde entsprechend einer Halbwertszeit von 22,4 Std. eingezeichnet. Es handelt sich um dieselbe Probe und denselben Versuch wie bei Fig. 5c und d. Der Nulleffekt ist abgezogen, wegen der Korrekturen auf eine 2,4 Std.- und auf eine langlebige Störaktivität s. Anhang

Die Größe I ist definiert durch die Gleichung

$$I = \lambda \int_0^{\tau} i(t) \exp(-\lambda t) dt,$$

wobei $-t = \tau$ den Anfang, $t = 0$ das Ende der Bestrahlung bezeichnet; λ ist die Zerfallskonstante der betrachteten Aktivität, $i(t)$ der Strom der Ionisationskammer.

W_{Ca} und W_{C} sind die Wahrscheinlichkeiten, daß der Zerfall eines K^{43} - bzw. C^{11} -Kernes vom Detektor nachgewiesen wird. Von dem gesamten Spektrum wurden für die Auswertung der relativen Ausbeute $Y_{\text{Ca}}/Y_{\text{C}}$ nur die Bereiche B und C der Fig. 5 benutzt. Für diese Bereiche ist W bis auf geringfügige, unten erwähnte Korrekturen das Produkt bw aus der Wahrscheinlichkeit b , daß bei einem Zerfall ein Quant der Energie E emittiert wird, und der Photoansprechwahrscheinlichkeit w , daß dieses Quant als Impuls in der Photolinie gezählt wird. Mit den im folgenden Abschnitt diskutierten Daten erhielten wir $W_{\text{Ca}}/W_{\text{C}} = 0,39_3 \pm 4\%$ für den $1\frac{1}{2}'' \times 2''$ Kristall.

Fig. 5b erläutert, daß die experimentell gefundene Linie B aus zwei nicht aufgelösten Komponenten von 591 und 619 keV besteht. In guter Näherung* ist deshalb $W_{Ca} = w^{591}b^{591} + w^{619}b^{619}$. Die Größen b^{619} und b^{591} ließen sich nicht direkt aus der Literatur entnehmen. Daher wurden die relativen Intensitäten der γ -Linien benutzt, die BENCZER-KOLLER, SCHWARZSCHILD und WU [4] angeben. Den Messungen der β -Verzweigungsverhältnisse von LINDQVIST und MITCHELL [19] die damit nicht gut vereinbar sind, wurde lediglich entnommen, daß 1,6% der K^{43} -Zerfälle zum Grundzustand des Ca^{43} , 0% zu dem 374 keV-Niveau führen. Man erhält so $b^{619} = 0,732$ und $b^{591} = 0,184$ mit einer geschätzten Unsicherheit von 2%. Die Größe b_C hat den Wert 2,00, da C^{11} ein reiner Positronenstrahler ist und Dreiquantenzerfälle vernachlässigt werden können. Die Photoansprechwahrscheinlichkeiten w^{591} , w^{619} und $w_C = w^{511}$ für die γ -Linien des K^{43} und die Vernichtungsstrahlung des C^{11} wurden mit Hilfe von Literaturangaben [9], [20], [28] unter vereinfachenden Annahmen berechnet; es ergab sich $w^{511}:w^{591}:w^{619} = 1:0,83_0:0,78_5$. Die Zulässigkeit des benutzten Rechenverfahrens für unsere Zählgeometrie wurde durch Intensitätsmessungen an den γ -Linien des J^{126} (386 keV und 667 keV; Intensitätsverhältnis 100:97) geprüft**. Die gemessenen und gerechneten Werte stimmten auf 2% überein. Eine entsprechende Kontrolle konnte am K^{43} unter Verwendung des bisher nicht benutzten Bereichs A (s. Fig. 5c) durchgeführt werden. Hier betrug die Übereinstimmung 4%.

Zur Bestimmung von Y_{Ca}/Y_C wurden fünf Einzelexperimente durchgeführt. In vier Fällen erfolgte die Bestrahlung in der in Fig. 4 dargestellten Geometrie, in einem Fall befand sich die Probe unmittelbar am Austrittsfenster des Betatrons. Mit den diskutierten Größen ergibt sich als Mittelwert für die relative Ausbeute:

$$\underline{Y_{Ca}/Y_C = 3,24 \pm 10\% .}$$

c) *Schwächung der Ausbeute durch den Bleiabsorber:* D_{Ca} und D_C . Die Schwächung der Ausbeute von $Ca^{44}(\gamma, p)K^{43}$ durch den Bleiabsorber wurde nicht direkt, sondern relativ gegen die Schwächung der Ausbeute von $C^{12}(\gamma, n)C^{11}$ gemessen, indem untersucht wurde, wie sich Y_{Ca}/Y_C bei Vorschalten des Absorbers änderte. Zur Auswertung der relativen Schwächung D_{Ca}/D_C wurden die Bereiche A , B und C der Fig. 5 benutzt. Als Mittelwert aus vier Messungen ergab sich $D_{Ca}/D_C = 1,055 \pm 4\%$. Mit*** $D_C = 0,262 \pm 0,5\%$ folgt $D_{Ca} = 0,276 \pm 4\%$. Aus diesem Wert läßt sich abschätzen, daß der Schwerpunkt des $Ca^{44}(\gamma, p)$ -Wirkungsquerschnittes bei etwa 22 MeV liegt. Die Anwendung von Gl. (4) erscheint deshalb im vorliegenden Fall gerechtfertigt.

* Zu berücksichtigen war noch: 1. Die Störung des Bereiches B durch das Compton-Kontinuum der sehr schwachen 1005 keV-Linie des K^{43} , 2. die Absorption in Probe und Halterung und 3. der Einfluß der Grenzen des Zählbereiches.

** Für die Durchführung dieser Untersuchung im Rahmen einer Großpraktikumsarbeit danken wir J. SCHEER.

*** Die hohe Genauigkeit beruht auf gesonderten Messungen von C. SALANDER, doch lagen die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Werte innerhalb ihrer Fehlergrenzen beim gleichen Zahlenwert.

d) *Integrierter Wirkungsquerschnitt für $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$.* Nach den Ausführungen in der Einleitung und in Teil II lassen sich mit den Meßwerten die verschiedenen Integrale über den Wirkungsquerschnitt und die daraus ableitbaren Energien berechnen. Wir beschränken uns auf die Angabe des integrierten Wirkungsquerschnitts, da dieser mit Ergebnissen anderer Autoren verglichen werden kann.

Aus (4) ergibt sich unter Berücksichtigung der bei Tabelle 1 gemachten Anmerkungen

$$\int_{E_t}^{31 \text{ MeV}} \sigma_{\text{Ca}}(E) dE \bigg/ \int_{E_t}^{31 \text{ MeV}} \sigma_{\text{C}}(E) dE = 2,6_6 \pm 0,5.$$

Mit dem Wert

$$\int_{E_t}^{31 \text{ MeV}} \sigma_{\text{C}}(E) dE = 46,8 \text{ MeVmb} \pm 7\%$$

nach BARBER, GEORGE und REAGAN [3] folgt daraus:

$$\int_{E_t}^{31 \text{ MeV}} \sigma_{\text{Ca}}(E) dE = (125 \pm 25) \text{ MeVmb}.$$

Tabelle 2, in der einige Meßwerte für die (γ, n) - und (γ, p) -Prozesse an A^{40} , Ca^{40} und Ca^{44} zusammengestellt sind, zeigt, daß der (γ, p) -Wirkungsquerschnitt des Ca^{44} durchaus nicht überraschend groß ist.

Tabelle 2. (γ, n) - und (γ, p) -Prozesse an A^{40} , Ca^{40} und Ca^{44}

Kern	Prozeß	Schwelle E_t (MeV)	Integrations- grenze E_g (MeV)	$\int_{E_t}^{E_g} \sigma(E) dE$ (MeVb)	Autoren
A^{40}	(γ, n)	9,8	24	0,35	[21]
			25	0,23	[7]
	(γ, p)	12,0	25	0,54	[21]
Ca^{40}	(γ, n)	16,0	23	0,06	[8]
			24,5	0,065	[29]
	(γ, p)	8,3	28	0,44	[13]
Ca^{44}	(γ, n)	11,2	etwa 18	(0,27)	[8]
	(γ, p)	12,2	31	0,12	diese Arbeit

Die Bindungsenergien E_t sind einer Arbeit von WAPSTRA [30] entnommen. Der Wert für $\int \sigma(\gamma, n) dE$ des Ca^{44} wurde nach der Angabe von GOLDBERG und KATZ [8] abgeschätzt und kann wohl als untere Grenze aufgefaßt werden.

4. Anhang: Störende Reaktionen

a) $\text{Ca}^{44}(\gamma, n\beta + d)\text{K}^{42}$; $\text{Ca}^{43}(\gamma, p)\text{K}^{42}$. Durch den Nachweis der K^{43} -Aktivität mit einem γ -Spektrometer wurde gegen die K^{42} -Aktivität diskriminiert. Die K^{43} - γ -Linien werden dabei nur durch die Compton-Verteilung der 1,5 MeV-Quanten gestört, die bei 18% der K^{42} -Zerfälle auftreten [31].

Es wurde abgeschätzt, daß die erste Reaktion etwa $1/7$ der Ausbeute, die zweite Reaktion etwa die gleiche Ausbeute hat wie der Prozeß $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$. Daraus folgt, daß die beiden Störungen die Werte von $Y_{\text{Ca}}/Y_{\text{C}}$ und $D_{\text{Ca}}/D_{\text{C}}$ höchstens um 0,5% verfälschen können.

b) $\text{Ca}^{43}(n, p)\text{K}^{43}$. Um die durch diese Reaktion erzeugte K^{43} -Aktivität experimentell abzuschätzen, wurde die CaCO_3 -Probe gegen eine $(\text{NaPO}_3)_3$ -Probe ausgetauscht. Es zeigte sich, daß die analoge Reaktion $\text{P}^{31}(n, p)$ an dem (verglichen mit Ca^{43}) 700mal häufigeren P^{31} zu einer meßbaren Si^{31} -Aktivität führte. Für die Abschätzung wurde angenommen, daß sich der Neutronenfluß in der Probe durch das Auswechseln nicht ändert und daß die (n, p) -Wirkungsquerschnitte am P^{31} und Ca^{43} gleich sind. Diese Annahme liefert wahrscheinlich eine obere Grenze für die störende Reaktion $\text{Ca}^{43}(n, p)\text{K}^{43}$. Die (γ, n) -Ausbeuten an Na und P sind nämlich größer als die an Ca und C; außerdem liegt die (n, p) -Schwelle am P^{31} niedriger als am Ca^{43} . Eine Messung mit und ohne Bleiabsorber ergab, daß höchstens 0,2% der gebildeten K^{43} -Kerne durch die (n, p) -Reaktion entstanden sein können.

c) $\text{Sr}^{88}(\gamma, n)\text{Sr}^{87\text{m}}(?)$. Besondere Aufmerksamkeit wurde einer schwachen Fremdaktivität gewidmet, deren bei etwa 380 keV liegende γ -Linie mit 2 bis 3 Std Halbwertszeit abfiel. Bereits JOYET [14] hatte bei der Bestrahlung von Ca und CaO eine schwache Störaktivität mit ähnlicher Halbwertszeit gefunden, deren Stärke von der Herkunft des benutzten Probenmaterials abzuhängen schien. Energie und Halbwertszeit der Störung bei unseren Versuchen ließen eine geringfügige Strontium-Verunreinigung vermuten, die durch (γ, n) -Prozeß an dem 82,7%-Isotop Sr^{88} die 2,8 Std-Aktivität des $\text{Sr}^{87\text{m}}$ liefern würde. Wir haben daher einer bestrahlten Probe aus dem von uns benutzten CaCO_3 Strontiumträger zugesetzt, das Ca mit $\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ gefällt und das Sr als Carbonat abgetrennt. Der Sr-Niederschlag wurde einmal umgefällt. Die so erhaltene Sr-Fraktion zeigte eine einzige γ -Linie bei 390 ± 10 keV, die mit einer Halbwertszeit von 2,4 Std abfiel. Mittelwerte aus der Literatur für die Energie und Halbwertszeit der $\text{Sr}^{87\text{m}}$ - γ -Linie sind 388 keV und 2,84 Std. Die Zuordnung der Störaktivität zu $\text{Sr}^{87\text{m}}$ ist damit wahrscheinlich. An den Zählraten des K^{43} im Bereich A (Fig. 5) sind entsprechende Korrekturen angebracht worden, die je nach der Meßdauer zwischen 0,1% und 5% betragen.

Die Zuordnung zu $\text{Sr}^{87\text{m}}$ ist auch mit den Beobachtungen von JOYET, der die Aktivität mit β -Zählung nachwies, vereinbar, da die fragliche Linie zu 28% konvertiert ist. Unter der sicher übertriebenen Annahme, daß alle von YERGIN und FABRICAND [33] am Sr^{88} durch Neutronennachweis gemessenen (γ, n) -Prozesse vom metastabilen Niveau führen, würde sich als untere Grenze für die Größe der Verunreinigung ein Gewichtsverhältnis Sr zu Ca von $2 \cdot 10^{-4}$ ergeben.

d) *Langlebige Störaktivität*. Beim Verfolgen der Abfallkurven über längere Zeit zeigte sich eine in den Bereichen A und B verschiedene Abweichung der Halbwertszeit von 22,4 Std, die wir nicht zum Teil durch eine andere Halbwertszeit des K^{43} zu erklären versucht, sondern ganz einer langlebigen Störaktivität zugeschrieben haben. Im Beispiel der Fig. 6 ist diese mit 1,9 Impulsen je Minute im Bereich A und mit 1,4 Impulsen je Minute im Bereich B abgezogen worden. Für die Auswertung von $Y_{\text{Ca}}/Y_{\text{C}}$ und $D_{\text{Ca}}/D_{\text{C}}$ spielte diese Korrektur keine Rolle.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die das Betatron und die Apparaturen als Leihgabe zur Verfügung gestellt hat. Die Firma Siemens-Reiniger-Werke AG half durch eine Forschungsspende bei der Anschaffung des Betatrons. Herr D. RENNER hat als Betreuer des Betatrons die Bestrahlungen durchgeführt, wofür ihm unser besonderer Dank gilt. Wir danken ferner Herrn K. FISCHER, der mit seiner Apparatur einen Teil der Betazählungen durchgeführt hat.

Literatur

- [1] ANDERSSON, G.: *Phil. Mag.* **45**, 621 (1954). — [2] BÄCKSTRÖM, G., u. T. LINDQVIST: *Ark. Fysik* **11**, 465 (1957). — [3] BARBER, W. C., W. D. GEORGE and D. D. REAGAN: *Phys. Rev.* **98**, 73 (1955). — [4] BENCZER-KOLLER, N., A. SCHWARZSCHILD and C. S. WU: *Bull. Amer. Phys. Soc. (II)* **2**, 1, 23 (1957). — [5] BERMAN, A. I., and K. L. BROWN: *Phys. Rev.* **96**, 83 (1954). — [6] ELMORE, W. C., and M. SANDS: *Electronics*. New York 1949. — [7] FERGUSON, G. A., J. HALPERN, R. NATHANS and P. F. YERGIN: *Phys. Rev.* **95**, 776 (1954). — [8] GOLDEMBERG, J., and L. KATZ: *Canad. J. Phys.* **32**, 49 (1954). — [9] HEATH, R. L., and F. SCHROEDER: *IDO-16149* (1954). — [10] HORSLEY, R. J., R. N. H. HASLAM and H. E. JOHNS: *Phys. Rev.* **87**, 756 (1952). — [11] HUTCHINSON, G. W., and G. G. SCARROT: *Phil. Mag.* **42**, 792 (1951). — [12] JOHNSTONE, C. W.: *Nucleonics* **11**, Nr. 1, 36 (1953). — [13] JOHANSSON, S. A. E.: *Phys. Rev.* **97**, 1186 (1955). — [14] JOYET, G.: *Bull. Acad. suisse Sci. med.* **8**, 556 (1952). — [15] KATZ, L., and A. G. W. CAMERON: *Canad. J. Phys.* **29**, 518 (1951). — [16] KATZ, L., and A. S. PENFOLD: *Phys. Rev.* **81**, 815 (1951); **83**, 169 (1951). — [17] LEVINGER, J. S.: *Phys. Rev.* **107**, 554 (1957). — [18] LEVINGER, J. S., and H. A. BETHE: *Phys. Rev.* **78**, 115 (1950). — [19] LINDQVIST, T., and A. C. G. MITCHELL: *Phys. Rev.* **95**, 444 (1954). — [20] MAEDER, D., R. MÜLLER u. V. WINTERSTEIGER: *Helv. phys. Acta* **27**, 3 (1954). — [21] MCPHERSON, D., E. PEDERSON and L. KATZ: *Canad. J. Phys.* **32**, 593 (1954). — [22] MONTALBETTI, R., L. KATZ and J. GOLDEMBERG: *Phys. Rev.* **91**, 659 (1953). — [23] NERVIK, W. E., and G. T. SEABORG: *Phys. Rev.* **97**, 1092 (1955). — [24] NIER, A. O.: *Phys. Rev.* **53**, 282 (1938). — [25] NIER, A. O.: *Phys. Rev.* **77**, 789 (1950). — [26] OVERSTREET, R., L. JACOBSON and P. R. STOUT: *Phys. Rev.* **75**, 231 (1949). — [27] SCOTT, M. B., A. O. HANSON and D. W. KERST: *Phys. Rev.* **100**, 209 (1955). — [28] SIEGBAHN, K.: *Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*. Amsterdam 1955. — [29] SUMMERS-GILL, R. G., R. N. H. HASLAM and L. KATZ: *Canad. J. Phys.* **31**, 70 (1953). — [30] WAPSTRA, A. H.: *Physica, Haag* **21**, 367 (1955). — [31] WAY, K., R. W. KING, C. L. MCGINNIS and R. VAN LIESHOUT: *TID 5300* (1955). — [32] WHITE, J. R., and A. E. CAMERON: *Phys. Rev.* **74**, 991 (1948). — [33] YERGIN, P. F., and B. P. FABRICAND: *Phys. Rev.* **104**, 1334 (1956).

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Heidelberg

Theorie der Vielfachstreuung polarisierter Elektronen

Von

B. MÜHLSCHLEGEL und H. KOPPE

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 7. Dezember 1957)

Es wird eine Theorie der Vielfachstreuung polarisierter Fermi-Teilchen an isotropen Streuzentren entwickelt und für Elektronen mit Hilfe der Kleinwinkel-Näherung näher durchgeführt. Damit kann die Änderung der Polarisierung bei Streuung an einer Folie und die Eigendepolarisation eines radioaktiven Präparates berechnet werden.

I. Einleitung

Wie man seit kurzem weiß, sind die beim β -Zerfall entstehenden Fermionen longitudinal polarisiert. Dadurch haben Versuche, bei denen die Elektronenpolarisation eine Rolle spielt, große Bedeutung gewonnen. Das Verhalten der Polarisierung im Falle der Einzelstreuung oder der Bewegung in schwach veränderlichen Feldern ist bekannt*. Es ist aber notwendig, auch den Einfluß der Vielfachstreuung auf den Spin der Teilchen zu untersuchen.

Einen unmittelbaren Anlaß hierzu bieten die Experimente von HEINTZE [1], die sich mit der Messung der longitudinalen Polarisation beschäftigen. Da man mittels einer als Analysator benutzten Einzelstreuung nur den zum Impuls senkrechten Anteil P_{\perp} des Polarisationsvektors \vec{P} nachweisen kann, ist es zunächst einmal notwendig, \vec{P} aus der Impulsrichtung herauszudrehen. Dies geschieht bei HEINTZE durch Ablenkung des Elektronenstrahls durch Vielfachstreuung. Da diese Ablenkung hauptsächlich infolge vieler Einzelstreuungen um sehr kleine Winkel zustandekommt, bei denen sich das Elektron (oder Positron) anschaulich in einem verhältnismäßig großen Abstand von den Atomkernen in einem schwach veränderlichen Feld bewegt, benutzte HEINTZE die plausible Hypothese, daß die Wirkung der Vielfachstreuung die gleiche ist wie die einer Ablenkung um denselben Winkel im konstanten elektrischen Feld (die Ablenkung im Zylinderkondensator wurde bekanntlich zuerst von FRAUENFELDER [2] verwendet).

Diese Hypothese des „elektrostatischen Mitdrehens“ wird hier nachgeprüft. Dabei stellt sich heraus, daß sie eine gute Näherung ist, daß aber doch gewisse Abweichungen auftreten. Diese haben einen doppelten

* Wir verweisen auf die zusammenfassenden Berichte von TOLHOEK [3] und WOLFENSTEIN [4].

Grund: Erstens dreht sich der Spin im Mittel etwas weniger als im elektrostatischen Feld (der entsprechende Faktor ist abhängig vom Ablenkungswinkel Θ und der Schichtdicke). Zweitens sind die Spindrehungen der in eine bestimmte Richtung abgelenkten Elektronen nicht alle gleich. Man kann nur das Mittel beobachten, und so ergibt sich eine geringfügige Depolarisation.

Eine weitere Frage, die kurz behandelt wird, ist die Eigendepolarisation des Präparates. Da dieses eine endliche Dicke hat, sind dem Strahl der Elektronen, die das Präparat in einer bestimmten Richtung verlassen, solche beigemischt, die — bei einem Zerfall zunächst in eine andere Richtung emittiert — durch Vielfachstreuung im Präparat abgelenkt worden sind, und demzufolge eine etwas kleinere longitudinale Polarisation haben.

Den Rechnungen liegt die von WALDMANN [5] angegebene Verallgemeinerung der Boltzmannschen Stoßgleichung zugrunde. Da das entstehende Gleichungssystem sehr kompliziert ist, ist es notwendig (und sinnvoll), zur Kleinwinkel-Näherung überzugehen. Hierbei wird weitgehend von der Theorie von MOLIERE [6] (vgl. auch BETHE [7]) Gebrauch gemacht.

II. Einzelstreuung polarisierter Elektronen

Wir betrachten zunächst ein nichtrelativistisches Teilchen vom Spin $\frac{1}{2}$, der Einheitsvektor \vec{s} gebe die Spinrichtung an. Bei statistischen Fragestellungen erwartet man Aussagen über die Wahrscheinlichkeitsverteilung $w(\vec{s})$ der verschiedenen Spinrichtungen. Mit dieser Verteilungsfunktion kann man Mittelwerte bilden, z.B.

$$\vec{P} = \int \vec{s} w(\vec{s}) d\vec{s}.$$

Quantenmechanisch wird der Spin durch eine zweikomponentige Wellenfunktion beschrieben. In diesem Fall stellt sich heraus, daß der Vektor \vec{P} die Richtungsstatistik des Spins bereits erschöpfend beschreibt: Verschiedene Funktionen $w(\vec{s})$, die zum gleichen Wert von \vec{P} führen, sind experimentell nicht zu unterscheiden. Als Mittelwert über verschieden gerichtete Vektoren vom Betrag 1 ist $|\vec{P}| = P \leq 1$. Man nennt \vec{P} den Polarisationsvektor und P den Polarisationsgrad. $P = 1$ heißt, daß ein „reiner Fall“ vorliegt, der sich durch eine Eigenfunktion beschreiben läßt. Der allgemeine Zustand wird durch die Dichtematrix

$$W(\vec{P}) = \frac{1}{2} (1 + \vec{P} \cdot \vec{\sigma}) \quad (1)$$

charakterisiert, wobei $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ die Paulischen Spinmatrizen sind. Für $P = 1$ ist W ein Projektionsoperator, d.h. es gilt $W^2 = W$.

Es werde jetzt ein Elektron vom Impuls \vec{k} und mit dem Polarisationsvektor \vec{P} an einem festen Streuzentrum gestreut. Wir fragen 1. nach der Wahrscheinlichkeit $w(\vec{k}', \vec{k}, \vec{P})$, daß es bei der Streuung den Impuls \vec{k}' bekommt, und 2. nach dem Polarisationsvektor \vec{P}' wenn es nach der Streuung den Impuls \vec{k}' hat (\vec{P}' ist also eine Funktion von \vec{P}, \vec{k} und \vec{k}'). Die beiden Fragen werden beantwortet mit Hilfe der Übergangsamplitude A :

$$w(\vec{k}', \vec{k}, \vec{P}) W(\vec{P}') = A(\vec{k}', \vec{k}) W(\vec{P}) A^*(\vec{k}, \vec{k}). \quad (2)$$

Die Spin-Bahnpkopplung des Elektrons, die eine Änderung von \vec{P} bei der Streuung bewirkt, ist ein relativistischer Effekt. Wir müssen demnach mit den vierkomponentigen Diracschen Eigenfunktionen rechnen. Man kann aber trotzdem die (zweikomponentige) Gl. (2) benutzen, muß aber folgendes beachten: Die Definition von \vec{P} ist im relativistischen Fall eine Frage der Konvention. Für jede mögliche Definition gibt es zugehörige Matrizen A und einen Operator $\vec{\Sigma}$, dessen Erwartungswert gleich \vec{P} ist, mit dessen Hilfe man also die Komponenten von \vec{P} durch die Erwartungswerte von $\vec{\sigma}$ ausdrücken kann, und umgekehrt. Wir benutzen die zweckmäßige Definition von TOLHOEK [3]. In diesem Falle ist A die von MOTT berechnete Transformationsmatrix für die „großen Komponenten“ [s. unten Gl. (7)], und es gilt

$$\vec{\Sigma} = \frac{E}{m} \vec{\sigma} - \frac{(\vec{k} \cdot \vec{\sigma}) \vec{k}}{m(E+m)}. \quad (3)$$

Diese Gleichung gestattet den Polarisationsvektor \vec{P} des einlaufenden Strahls aus den von der Theorie des β -Zerfalls gelieferten Erwartungswerten von $\vec{\sigma}$ zu berechnen. Der Impuls liege in der z -Richtung. In diesem Fall ist für ein β -Elektron nur $\langle \sigma_z \rangle$ von Null verschieden, und nach (3) wird dann ebenfalls nur $P_z \neq 0$ und gleich $\langle \sigma_z \rangle$, weil $E/m - k^2/m(E+m) = 1$.

Die Tolhoeksche Definition der Dichtematrix lautet:

$$D_{\vec{k}, \vec{P}} = \frac{2E}{E+m} A_+(\vec{k}) \frac{1+\beta}{2} W(\vec{P}) \frac{1+\beta}{2} A_+(\vec{k}). \quad (4)$$

Dabei sind alle Operatoren (einschließlich der σ in W) als vierzeilige Dirac-Matrizen zu verstehen. $A_+(\vec{k}) = (E + \vec{\alpha} \cdot \vec{k} + m\beta)/2E$ ist der Projektionsoperator der Zustände positiver Energie, $A_+(0) = \frac{1+\beta}{2}$ projiziert im Ruhssystem. Es besteht die Beziehung

$$A_+ = \frac{2E}{E+m} A_+ \frac{1+\beta}{2} A_+. \quad (5)$$

Es gilt $\text{Spur } (D) = 1$; für $P = 1$ ist D ein Projektionsoperator. Gl. (3) folgt unmittelbar aus (4). (Andere mögliche Definitionen von P würde man erhalten, wenn man in (4) für $(1 + \beta)/2$ einen anderen Operator O einsetzt.)

Die Eigenfunktion eines Streuzustandes ist:

$$\psi = a e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}} + T(\vec{k}', \vec{k}) a \frac{e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}}}{r}. \quad (6a)$$

Daraus folgt die zu (2) analoge Beziehung

$$w(\vec{k}', \vec{k}, \vec{P}) D_{\vec{k}', \vec{P}}^{\vec{k}} = A_+(\vec{k}') T(\vec{k}', \vec{k}) D_{\vec{k}, \vec{P}}^{\vec{k}} T^+(\vec{k}', \vec{k}) A_+(\vec{k}). \quad (6b)$$

Da bei gegebenem Impuls die D durch die darin enthaltenen $W(\vec{P})$ völlig bestimmt sind, muß es möglich sein, die Transformation auf diese überzuwälzen. Dazu setzt man für $A_+(\vec{k}')$ nach (5) ein, und erhält (2) mit

$$A = \frac{2E}{E+m} \frac{1+\beta}{2} A_+(\vec{k}') T(\vec{k}', \vec{k}) A_+(\vec{k}) \frac{1+\beta}{2}.$$

Dabei besteht zunächst noch der formale Unterschied, daß die $\vec{\sigma}$ in (1) und (2) als zweireihige Pauli-Matrizen gemeint waren, während jetzt überall vierreihige Dirac-Matrizen dastehen. Nun ist aber A als Operator der Form $\frac{1+\beta}{2} R \frac{1+\beta}{2}$ eine Linearkombination der 4 Operatoren $\frac{1+\beta}{2}$ und $\frac{1+\beta}{2} \vec{\sigma}$, die isomorph zur Eins und den 3 Pauli-Matrizen sind. Die endgültige Reduktion auf die großen Komponenten besteht also darin, daß man in A nach Ausführung aller Multiplikationen $\beta = 1$ setzt, und die verbleibenden σ als Pauli-Matrizen auffaßt.

Die Bedeutung von A ergibt sich folgendermaßen:

Der Spinor $b = Ta$ der auslaufenden Welle bleibt ungeändert, wenn man ihn mit $A_+(\vec{k}')$ multipliziert: $b = A_+(\vec{k}') b = A_+(\vec{k}') Ta$. Multipliziert man noch mit $\frac{1+\beta}{2}$, so erhält man

$$\frac{1+\beta}{2} b = \frac{1+\beta}{2} A_+(\vec{k}') Ta.$$

Andererseits ist $a = A_+(\vec{k}) a$, und daher wegen (5) und der Idempotenz von $\frac{1+\beta}{2}$:

$$a = \frac{2E}{E+m} A_+(\vec{k}) \frac{1+\beta}{2} \frac{1+\beta}{2} a$$

und damit schließlich

$$\frac{1+\beta}{2} b = \frac{2E}{E+m} \frac{1+\beta}{2} A_+(\vec{k}') T A_+(\vec{k}) \frac{1+\beta}{2} \frac{1+\beta}{2} a = A \frac{1+\beta}{2} a.$$

A ist also gerade die von Mott berechnete Matrix [8], die die „großen“ Komponenten der Spinoren transformiert.

Es seien jetzt \vec{n} und \vec{n}' Einheitsvektoren in der Richtung von \vec{k} und \vec{k}' , und $\vec{u} = \vec{n} \times \vec{n}'$. Dann hat A für ein kugelsymmetrisches Potential bereits aus Gründen der Drehinvarianz die Form:

$$A = f + i g \vec{u} \cdot \vec{\sigma}, \quad (7)$$

wobei f und g Funktionen des Winkels ϑ zwischen \vec{n} und \vec{n}' sind*. Setzt man (7) in (2) ein, so ergibt der Vergleich zwischen den Matrixkomponenten:

$$\begin{aligned} AA^+ &= A^+A = J + D\vec{u} \cdot \vec{\sigma} \\ AWA^+ &= A^+WA = \frac{1}{2}(J + D\vec{u} \cdot \vec{P}) + \\ &+ \frac{1}{2}(J\vec{P} + D\vec{u} + F\vec{u} \times \vec{P} + G\{(\vec{u} \cdot \vec{P})\vec{u} - u^2\vec{P}\}) \cdot \vec{\sigma} \\ w(\vec{n}', \vec{n}, \vec{P}) &= \text{Spur}(AWA^+) = J + D\vec{u} \cdot \vec{P} \end{aligned} \quad (8)$$

mit

$$\begin{aligned} J &= f^*f + u^2g^*g \\ D &= i(f^*g - fg^*) \\ F &= -(f^*g + fg^*) \\ G &= 2g^*g. \end{aligned} \quad (9)$$

Zwischen diesen vier reellen Funktionen** besteht die Beziehung

$$(J - u^2G)^2 + u^2(D^2 + F^2) = J^2. \quad (10)$$

(2) und (8) entnehmen wir

$$\begin{aligned} \vec{P}' &= \vec{P}'(\vec{P}, \vec{u}) \\ &= \frac{1}{J + D\vec{u} \cdot \vec{P}} \{ (J - u^2G)\vec{P} + (D + G\vec{u} \cdot \vec{P})\vec{u} + F\vec{u} \times \vec{P} \}. \end{aligned} \quad (11)$$

Diese Transformation des Polarisationsvektors bei der Streuung hat einige charakteristische Eigenschaften. Es ist vorteilhaft, den Vektor $\vec{P}_M = \frac{D}{J} \vec{u}$ einzuführen, (11) führt dann zu

$$\vec{u} \cdot \vec{P}' = \frac{1}{1 + \vec{P}_M \cdot \vec{P}} (\vec{P} + \vec{P}_M) \cdot \vec{u} \quad (12a)$$

und mit (10) zu

$$1 - P'^2 = \frac{1}{(1 + \vec{P}_M \cdot \vec{P})^2} (1 - P_M^2)(1 - P^2). \quad (12b)$$

Wir erkennen:

1. Ist $P=0$, so entsteht senkrecht zur Streuebene $\vec{P}' = \vec{P}_M$ (Mott-Polarisation, P_M ist der Asymmetriefaktor); bei $\vec{P} = -\vec{P}_M$ gibt es völlige Depolarisation.

2. $P=1 \rightarrow P'=1$, der reine Fall bleibt rein.

* Es erscheint uns im Hinblick auf die Vorwärtsstreuung vorteilhafter, $u = \sin \vartheta = |\vec{n} \times \vec{n}'|$ aus dem Mottschen g herauszuziehen; wegen der Abschirmung sind $f(0)$ und $g(0)$ bei uns endlich.

** Die entsprechenden Größen bei TOLHOEK sind: $\bar{J}_T = J$, $D_T = uD$, $F_T = uF$, $G_T = u^2G$.

3. Bei $P < 1$ kann sich, solange $\vec{P}_M \cdot \vec{P}' = (1 - |1 - P_M^2|)$ ist, der Polarisationsgrad nicht verkleinern.

4. Die Richtung von \vec{P} bleibt nur dann erhalten, wenn sie auf der Streuebene senkrecht steht.

5. Bei Vorwärtsstreuung ist $\vec{P}' = \vec{P}$, was wegen der Kugelsymmetrie des Potentials physikalisch evident ist. Natürlich bleibt der Polarisationsvektor auch bei nichtrelativistischer Rechnung ($g=0$) ungeändert.

In Bornscher Näherung wird

$$f = \left[1 - \frac{E-m}{2E} (1 - \cos \vartheta) \right] \frac{E}{m} f_0, \quad g = - \frac{E-m}{2E} \frac{E}{m} f_0, \quad (13)$$

wobei

$$f_0 = - \frac{m}{2\pi} \int V(\mathbf{r}) e^{ik(\vec{n}-\vec{n}') \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r}$$

die Übergangsamplitude der nichtrelativistischen Theorie ist*. fg^* wird also reell, es verschwindet D und damit auch die Mott-Polarisation, was wohlbekannt ist. Nach (12) ist $P' = P$ und $\vec{u} \cdot \vec{P}' = \vec{u} \cdot \vec{P}$. Anschaulich bedeutet das, daß sich \vec{P} , ohne seine Länge zu ändern, um die Achse \vec{u} dreht. Für den Winkel η zwischen \vec{P} und \vec{P}' ergibt sich, wenn α der Winkel zwischen \vec{P} und \vec{u} ist:

$$\sin \frac{\eta}{2} = \sqrt{\frac{G}{2J}} \sin \vartheta \sin \alpha.$$

Die Bornsche Näherung (13) liefert hierfür bei kleinem Streuwinkel

$$\eta = \frac{E-m}{E} \vartheta \sin \alpha. \quad (14)$$

Wir bekommen dieselbe Ablenkung wie in einem konstanten elektrischen Feld, was sehr plausibel ist; denn bei kleinen Streuwinkeln wirkt das Streuzentrum auf die vorbeifliegenden Partikel annähernd wie ein transversales homogenes elektrisches Feld.

Neuere numerische Berechnungen der maßgeblichen Funktionen (9) stammen für die Coulomb-Streuung von SHERMAN [9] (ab 15°) und ALLEN-PHILLIPS-WHITTAKER [10] (ab 5°).

Hinsichtlich der älteren Literatur sei auf die Angaben bei TOLHOEK [3] verwiesen.

* Für den durch (6a) definierten Operator T erhält man in Bornscher Näherung $T = \frac{f_0}{2m} (2E + \vec{k}' \cdot \vec{\alpha} - \vec{k} \cdot \vec{\alpha})$. Setzt man das in (6c) ein, so ergibt sich (7) mit den in (13) angegebenen Werten von f und g .

III. Die verallgemeinerte Boltzmann-Gleichung

Solange der Spin außer Betracht bleibt, wird die Vielfachstreuung von Elektronen beschrieben durch die Stoßgleichung

$$\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \varrho(\vec{n}, \mathbf{r}) = N \int \sigma_{\vec{n} \vec{n}'} \varrho(\vec{n}', \mathbf{r}) d\vec{n}' - N \varrho(\vec{n}, \mathbf{r}) \int \sigma_{\vec{n}' \vec{n}} d\vec{n}'. \quad (15)$$

Dabei ist $\varrho(\vec{n}, \mathbf{r})$ die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron mit der Geschwindigkeit \vec{n} an der Stelle \mathbf{r} zu finden, $\sigma_{\vec{n} \vec{n}'}$ der elastische Streuquerschnitt und N die Anzahl der Streuzentren pro Raumeinheit.

Die Verallgemeinerung der Boltzmann-Gleichung, die den Spin der stoßenden Teilchen mit einschließt, ist von WALDMANN [5] angegeben worden. An die Stelle von (15) tritt eine Matrixgleichung, die für Spin $\frac{1}{2}$ lautet:

$$\begin{aligned} \vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \underline{f}(\vec{n}, \mathbf{r}) = N \int A(\vec{n}, \vec{n}') \underline{f}(\vec{n}', \mathbf{r}) A^+(\vec{n}, \vec{n}') d\vec{n}' - \\ - \frac{2\pi N}{i\hbar} \{A(\vec{n}, \vec{n}) \underline{f}(\vec{n}, \mathbf{r}) - \underline{f}(\vec{n}, \mathbf{r}) A^+(\vec{n}, \vec{n})\}. \end{aligned} \quad (16)$$

A ist die in (7) definierte Streuamplituden-Matrix und \underline{f} die ebenfalls zweireihige Verteilungsmatrix. Spur $(\underline{f}) = \varrho$ hat die gleiche Bedeutung wie in (15). Schreiben wir \underline{f} mit Hilfe der Pauli-Matrizen in der Form

$$\underline{f}(\vec{n}, \mathbf{r}) = \frac{1}{2} (\varrho(\vec{n}, \mathbf{r}) + \vec{\pi}(\vec{n}, \mathbf{r}) \cdot \vec{\sigma}) = \varrho W(\vec{P}) \quad (17)$$

so ist $\vec{\pi} = \text{Spur}(\underline{f} \vec{\sigma})$ die Drehimpulsdichte der Elektronen mit der Geschwindigkeit \vec{n} und $\vec{P}(\vec{n}, \mathbf{r}) = \vec{\pi}/\varrho$ deren mittlere Polarisation.

In der Gl. (16) ist der erste Term rechts als Verallgemeinerung des entsprechenden Integrals in (15) sofort zu verstehen. Daß sich die zweiten Terme weniger offensichtlich entsprechen, liegt daran, daß im allgemeinen Fall auch bei einem Teilchen, welches in seiner Richtung nicht abgelenkt wird, der Spin geändert werden kann (das Streuzentrum wirkt dann nicht wie ein halbdurchlässiger Spiegel, sondern wie ein $\lambda/4$ -Plättchen).

Sind die Streuzentren isotrop (oder im Mittel isotrop), so ist für die Vorwärtstreuung $A(\vec{n}, \vec{n})$ ein Vielfaches der Einheitsmatrix. Man kann dann mit Hilfe des aus der Unitarität der S -Matrix folgenden „Schattentheorems“ [11]

$$\int A^+(\vec{n}', \vec{n}) A(\vec{n}', \vec{n}) d\vec{n}' = \frac{2\pi}{i\hbar} \{A(\vec{n}, \vec{n}) - A^+(\vec{n}, \vec{n})\}$$

(16) umformen in die Gleichung

$$\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f(\vec{n}, \mathbf{r}) = N \int A(\vec{n}, \vec{n}') f(\vec{n}', \mathbf{r}) A^+(\vec{n}, \vec{n}') d\vec{n}' - \\ - N f(\vec{n}, \mathbf{r}) \int A^+(\vec{n}', \vec{n}) A(\vec{n}', \vec{n}) d\vec{n}', \quad (18)$$

die im folgenden benutzt wird.

Es ist für die weitere Rechnung bequem, diese Matrizen-Integralgleichung in ein System von Integralgleichungen für ϱ und $\vec{\pi}$ aus (17) zu trennen. Unter Benutzung von (8) und der Tatsache, daß die Funktionen (9) nur vom Winkel zwischen \vec{n} und \vec{n}' abhängen, ergibt sich ($\varrho' = \varrho(\vec{n}', \mathbf{r})$, $\vec{\pi}' = \vec{\pi}(\vec{n}', \mathbf{r})$)

$$\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \varrho = N \int J (\varrho' - \varrho) d\vec{n}' + N \int D (\vec{n}' \times \vec{n}) \cdot \vec{\pi}' d\vec{n}' \quad (19a)$$

$$\vec{n} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \vec{\pi} = N \int J (\vec{\pi}' - \vec{\pi}) d\vec{n}' + N \int D (\vec{n}' \times \vec{n}) \varrho' d\vec{n}' + \\ + N \int F (\vec{n}' \times \vec{n}) \times \vec{\pi}' d\vec{n}' + \\ + N \int G \{ [\vec{n}' \times \vec{n}] (\vec{n}' \times \vec{n}) \cdot \vec{\pi}' - (\vec{n}' \times \vec{n})^2 \vec{\pi}' \} d\vec{n}'. \quad (19b)$$

Dies sind unsere statistischen Grundgleichungen. Ohne Spin-Bahn-Koppelung ($D=F=G=0$) wird (19a) mit der Boltzmann-Gleichung (15) identisch, und (19b) hat, wie zu erwarten, die Lösung $\vec{\pi} = \varrho \cdot \text{const.}$

Allgemein genügt ϱ nur dann der Boltzmann-Gleichung, wenn $D=0$ ist. Daraus folgt, daß (15) selbst für die Streuung von ursprünglich unpolarisierten Elektronen nicht streng richtig ist. Der (bisher offenbar noch nicht bemerkte) Denkfehler, der in der Anwendung von (15) auf Fermionen steckt, besteht in der stillschweigenden Annahme, daß unpolarisierte Fermionen nach der Streuung noch unpolarisiert seien. Für Elektronen ist D allerdings sehr klein, so daß dieser grundsätzlichen Feststellung keine große praktische Bedeutung zukommen dürfte*.

IV. Kleinwinkel-Näherung und Integration

Ein Elektronenstrahl falle in der Richtung \vec{e} auf eine Schicht. Da nun die Vorwärtsstreuung stark bevorzugt ist, wird sich — wenn die Schicht nicht allzu dick ist — die Vielfachstreuung auf relativ kleine Winkel beschränken. Es bedeutet also eine sinnvolle Näherung, die

* Zu merklichen Fehlern kann die Boltzmann-Gleichung bei Fermionen dann führen, wenn ein beträchtlicher Asymmetriefaktor zugleich mit einer ziemlich anisotropen Streuung im Schwerpunktsystem auftritt. Das könnte unter Umständen bei der Streuung mittelschneller Neutronen der Fall sein.

Richtungskugel durch die zu \vec{e} gehörige Tangentialebene zu ersetzen, so daß mit $\vec{e} \cdot \vec{\Theta} = 0$:

$$\vec{n} \rightarrow \vec{e} + \vec{\Theta}, \quad \vec{n} \times \vec{n}' \rightarrow \vec{e} \times (\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}). \quad (20)$$

$|\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}|$ gibt den Winkel zwischen den Richtungen \vec{n} und \vec{n}' . Legen wir die z -Achse in Richtung \vec{e} , so wird überdies das Problem räumlich nur von z abhängen. Wir haben daher

$$\underline{f} = \underline{f}(\vec{\Theta}, z) = \frac{1}{2} (\varrho(\vec{\Theta}, z) + \vec{\pi}(\vec{\Theta}, z) \cdot \vec{\sigma})$$

$$A(\vec{n}', \vec{n}) = A(\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}) = f(|\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}|) + i g(|\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}|) (\vec{e} \times (\vec{\Theta}' - \vec{\Theta})) \cdot \vec{\sigma}$$

und (19a), (19b) werden:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varrho}{\partial z} &= N \int J(\varrho' - \varrho) d\vec{\Theta}' - \vec{e} \cdot N \int D(\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}) \times \vec{\pi}' d\vec{\Theta}' \\ \frac{\partial \vec{\pi}}{\partial z} &= N \int J(\vec{\pi}' - \vec{\pi}) d\vec{\Theta}' - \vec{e} \times N \int D(\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}) \varrho' d\vec{\Theta}' \\ &\quad - N \int d\vec{\Theta}' K(\vec{\Theta}' - \vec{\Theta}, \vec{e}) \vec{\pi}'. \end{aligned} \quad (21)$$

Dabei ist

$$K(\vec{\Theta}, \vec{e}) = F(\Theta) (\vec{e} \times \vec{\Theta}) \times + G(\Theta) [\vec{e} \times \vec{\Theta}] (\vec{\Theta} \times \vec{e}) \cdot + G(\Theta) \Theta^2 \quad (21a)$$

eine auf $\vec{\pi}'$ wirkende lineare Transformation. Die Integrationen erstrecken sich über die ganze aus den Vektoren $\vec{\Theta}$ gebildete Ebene. Die Güte der Kleinwinkel-Näherung wird jedoch durch die Tatsache bestimmt, daß die Funktionen $J, \dots G$ mit wachsendem Argument schnell abnehmen; weiteres hierzu in Abschnitt VI.

(21) ist ein System homogen linearer Integralgleichungen vom Faltungstyp. Wir lösen es, indem wir zunächst partikuläre Lösungen der Form

$$\varrho(\vec{\Theta}, z) = \tilde{\varrho}^{(m)} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} e^{-\lambda_m z}, \quad \vec{\pi}(\vec{\Theta}, z) = \tilde{\vec{\pi}}^{(m)} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} e^{-\lambda_m z} \quad (22)$$

suchen. Dabei sind $\lambda_m, \tilde{\varrho}^{(m)}$ und die Komponenten von $\tilde{\vec{\pi}}^{(m)}$ Konstanten, die von \vec{k} abhängen; es wird sich gleich herausstellen, daß es zu jedem Wert \vec{k} vier unabhängige Lösungen gibt, die durch den Index m unterschieden werden. (22) in (21) eingesetzt ergibt

$$\begin{aligned} -\lambda \tilde{\varrho} &= N \int d\vec{\Theta} J(\Theta) (e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} - 1) \tilde{\varrho} - \vec{e} \cdot N \int d\vec{\Theta} D(\Theta) e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} \vec{\Theta} \times \tilde{\vec{\pi}} \\ -\lambda \tilde{\vec{\pi}} &= N \int d\vec{\Theta} J(\Theta) (e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} - 1) \tilde{\vec{\pi}} - \vec{e} \times N \int d\vec{\Theta} D(\Theta) e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} \vec{\Theta} \tilde{\varrho} - \\ &\quad - N \int d\vec{\Theta} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} K(\vec{\Theta}, \vec{e}) \tilde{\vec{\pi}}. \end{aligned} \quad (23)$$

Die Integrale vereinfachen sich, wenn man in der $\vec{\Theta}$ -Ebene zu Polarkoordinaten mit der Achse \vec{k} übergeht. Die Winkelintegration führt auf Bessel-Funktionen; für das Folgende ist es zweckmäßig, die Funktionen

$$\begin{aligned}\omega(k) &= 2\pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta J(\Theta) J_0(k\Theta), \quad \omega_0 = \omega(0) \\ \delta(k) &= 2\pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta^2 D(\Theta) J_1(k\Theta) \\ \varphi(k) &= 2\pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta^2 F(\Theta) J_1(k\Theta) \\ \gamma(k) &= 2\pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta^3 G(\Theta) J_0(k\Theta) \\ \gamma_1(k) &= \frac{1}{2} \pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta^3 G(\Theta) \{J_0(k\Theta) + J_2(k\Theta)\}\end{aligned}\quad (24)$$

einzuführen. Mit ihnen schreibt sich (23)

$$\begin{aligned}-\lambda z \tilde{\varrho} &= (\omega - \omega_0) \tilde{\varrho} - i \delta(\vec{e} \times \vec{k}^0) \cdot \vec{\tilde{\pi}} \\ -\lambda z \vec{\tilde{\pi}} &= (\omega - \omega_0) \vec{\tilde{\pi}} - i \delta(\vec{e} \times \vec{k}^0) \tilde{\varrho} - i \varphi(\vec{e} \times \vec{k}^0) \times \vec{\tilde{\pi}} - \\ &\quad + 2\gamma_1(\vec{k}^0 \cdot \vec{\tilde{\pi}}) \vec{k}^0 + (\gamma - 2\gamma_1) ([\vec{e} \times \vec{k}^0] \cdot \vec{\tilde{\pi}}) \vec{e} \times \vec{k}^0 - \gamma \vec{\tilde{\pi}}.\end{aligned}\quad (25)$$

\vec{k}^0 ist der Einheitsvektor in Richtung \vec{k} . (25) wird besonders einfach, wenn wir $\vec{\tilde{\pi}}$ in kartesische Komponenten

$$\tilde{\pi}_1 = \vec{k}^0 \cdot \vec{\tilde{\pi}}, \quad \tilde{\pi}_2 = [\vec{e} \times \vec{k}^0] \cdot \vec{\tilde{\pi}}, \quad \tilde{\pi}_3 = \vec{e} \cdot \vec{\tilde{\pi}}$$

zerlegen und vorübergehend setzen

$$\omega - \omega_0 + \lambda z = \bar{\lambda}.\quad (26)$$

Wir erhalten dann

$$\begin{aligned}\bar{\lambda} \tilde{\varrho} - i \delta \tilde{\pi}_2 &= 0 \\ (\bar{\lambda} + 2\gamma_1 - \gamma) \tilde{\pi}_1 - i \varphi \tilde{\pi}_3 &= 0 \\ -i \delta \varrho + (\bar{\lambda} - 2\gamma_1) \tilde{\pi}_2 &= 0 \\ i \varphi \tilde{\pi}_1 + (\bar{\lambda} - \gamma) \tilde{\pi}_3 &= 0\end{aligned}$$

Es sind jeweils bloß $\tilde{\varrho}$ und $\tilde{\pi}_2$, $\tilde{\pi}_1$ und $\tilde{\pi}_3$ gekoppelt, so daß die Determinantenbedingung für $\bar{\lambda}$ in zwei quadratische Gleichungen zerfällt, deren Wurzeln

$$\bar{\lambda}_{1,2} = \gamma_1 \pm \sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}, \quad \bar{\lambda}_{3,4} = \gamma - \gamma_1 \pm \sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2}\quad (27)$$

sind. Die zugehörigen vier unabhängigen Lösungen von (25) sind

$$\begin{aligned} \vec{\varrho}^{(1,2)}: & \quad \alpha_1 \quad ; \quad \alpha_2 \quad ; \\ \vec{\pi}^{(1,2)}: & \quad \frac{\bar{\lambda}_1 \alpha_1}{i \delta} \begin{pmatrix} -\sin \psi \\ \cos \psi \\ 0 \end{pmatrix}; \quad \frac{\bar{\lambda}_2 \alpha_2}{i \delta} \begin{pmatrix} -\sin \psi \\ \cos \psi \\ 0 \end{pmatrix}; \\ \vec{\varrho}^{(3,4)}: & \quad 0 \quad ; \quad 0 \quad (28) \\ \vec{\pi}^{(3,4)}: & \quad \alpha_3 \begin{pmatrix} \frac{\gamma - \bar{\lambda}_3}{i \varphi} \cos \psi \\ \frac{\bar{\lambda}_3 - \gamma}{i \varphi} \sin \psi \\ 1 \end{pmatrix}; \quad \alpha_4 \begin{pmatrix} \frac{\gamma - \bar{\lambda}_4}{i \varphi} \cos \psi \\ \frac{\bar{\lambda}_4 - \gamma}{i \varphi} \sin \psi \\ 1 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Dabei haben wir $\vec{\pi}$ gleich auf ein Koordinatensystem bezogen, in dem \vec{k} den Winkel ψ mit der x -Achse bildet. Die α_m sind beliebige Funktionen von \vec{k} . Durch Superposition der Partikulärlösungen (22) erhalten wir jetzt unter Berücksichtigung von (26) und (28)

$$\begin{aligned} \varrho(\vec{\Theta}, z) &= \int \{ \alpha_1(\vec{k}) e^{i\omega - \omega_0 - \bar{\lambda}_1} + \alpha_2(\vec{k}) e^{i\omega - \omega_0 - \bar{\lambda}_2} \} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} \vec{d}\vec{k} \\ \vec{\pi}(\vec{\Theta}, z) &= \int \sum_{m=1}^4 \vec{\pi}^{(m)}(\vec{k}) e^{i\omega - \omega_0 - \bar{\lambda}_m} e^{i\vec{k} \cdot \vec{\Theta}} \vec{d}\vec{k} \end{aligned} \quad (29)$$

als allgemeine Lösung der statistischen Gleichungen in Kleinwinkel-Näherung.

Fällt der Elektronenstrahl senkrecht auf die Schicht, und ist \vec{P}_0 sein Polarisationsvektor, so haben wir als Randbedingung an der Schichtoberfläche*

$$\varrho(\vec{\Theta}, 0) = \delta(\vec{\Theta}), \quad \vec{\pi}(\vec{\Theta}, 0) = \vec{P}_0 \delta(\vec{\Theta})$$

oder mit (29):

$$\alpha_1 + \alpha_2 = \frac{1}{(2\pi)^2}, \quad \sum_m \vec{\pi}^{(m)} = \frac{\vec{P}_0}{(2\pi)^2}.$$

Diese vier Gleichungen legen die $\alpha_m(\vec{k})$ fest; mit Hilfe von (28) finden wir

$$\begin{aligned} \alpha_{1,2} &= \frac{1}{2(2\pi)^2} \left\{ 1 \mp \frac{1}{\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}} [\gamma_1 + i \delta (P_{0x} \sin \psi - P_{0y} \cos \psi)] \right\} \\ \alpha_{3,4} &= \frac{1}{2(2\pi)^2} \left\{ P_{0z} \pm \frac{1}{\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2}} [P_{0x} \gamma_1 - i \varphi (P_{0x} \cos \psi + P_{0y} \sin \psi)] \right\}. \end{aligned}$$

Beim Ausrechnen von (29) empfiehlt es sich, $\vec{\Theta}$ als x -Achse zu nehmen. Die y -Achse steht dann senkrecht auf der von \vec{e} und $\vec{\Theta}$ aufgespannten

* Hier (und nur hier) ist δ die Deltafunktion.

Vielfachstreuungsebene, und die Winkelintegrale sind wiederum Bessel-Funktionen. Man bekommt

$$\varrho(\vec{\Theta}, z) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk k \left\{ \cos \left[\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2} \right] + \frac{\gamma_1}{\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}} \sin \left[\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2} \right] e^{i\omega - \omega_0 - \gamma_1} J_0(k\Theta) + \right. \\ \left. + \frac{P_{0y}}{2\pi} \int_0^\infty dk k \frac{\delta}{\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}} \sin \left[\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2} \right] e^{i\omega - \omega_0 - \gamma_1} J_1(k\Theta) \right\} \quad (30)$$

Für $\delta = 0$ geht dies in die Molieresche Formel

$$\varrho = \frac{1}{2\pi} \int dk k e^{i\omega - \omega_0} J_0(k\Theta)$$

über, was nach dem im vorigen Abschnitt Gesagten nicht verwunderlich ist. Bei $\delta \neq 0$ gibt es, wenn die Anfangspolarisation eine transversale Komponente hat, wegen $P_{0y} = \frac{1}{\Theta} [\vec{e} \times \vec{\Theta}] \cdot \vec{P}_0$ eine Asymmetrie in der Vielfachstreuverteilung, die maximal ist senkrecht auf der durch \vec{e} und \vec{P}_0 gebildeten Ebene. Außerdem wird auch der symmetrische Teil der Winkelverteilung modifiziert.

Die allgemeinen Formeln für $\vec{\pi}$ sind ziemlich umständlich (sie sind im Anhang angegeben), wir schreiben sie daher nur für den uns interessierenden Spezialfall longitudinaler Anfangspolarisation ($P_{0x} = P_{0y} = 0$, $P_{0z} = P_0$) hin:

$$\pi_x = \frac{P_0}{2\pi} \int_0^\infty dk k \frac{\varphi}{\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2}} \sin \left[\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2} \right] e^{i\omega - \omega_0 - \gamma + \gamma_1} J_1(k\Theta) \\ \pi_y = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk k \frac{\delta}{\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}} \sin \left[\sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2} \right] e^{i\omega - \omega_0 - \gamma + \gamma_1} J_1(k\Theta) \quad (31) \\ \pi_z = \frac{P_0}{2\pi} \int_0^\infty dk k \left\{ \cos \left[\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2} \right] - \frac{\gamma_1}{\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2}} \sin \left[\sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2} \right] \right\} \times \\ \times e^{i\omega - \omega_0 - \gamma + \gamma_1} J_0(k\Theta).$$

Bei $\delta = 0$ verschwindet π_y . Es gibt also genau wie bei der Einzelstreuung keine Komponente senkrecht zur Streuebene.

V. Drehung des Polarisationsvektors

Um die Winkelverteilung und Polarisation bei der Vielfachstreuung ausrechnen zu können, müssen die Funktionen ω, \dots, γ_1 bekannt sein. $J(\Theta)$, der Wirkungsquerschnitt für die Einzelstreuung unpolarisierter

Elektronen, bestimmt nach (24) ω , während δ durch die Funktion $D(\Theta)$ festgelegt wird, die auch für die Mott-Polarisation verantwortlich ist. Diese nimmt nun bei der Einzelstreuung nach kleinen Winkeln hin erheblich ab, wie z.B. die Tabellen von SHERMAN [9] zeigen, dessen Asymmetriefaktor S mit unserem P_M identisch ist. Es sollte daher für unsere Kleinwinkel-Rechnungen erlaubt sein, überhaupt $D=0$ zu setzen. Dann vollführt — wie aus II bekannt — der Polarisationsvektor bei jeder Einzelstreuung eine Drehung, ohne dabei seinen Betrag zu ändern. Ferner wird für kleine Winkel

$$\begin{aligned} J(\Theta) &= |f(\Theta)|^2 + \Theta^2 |g(\Theta)|^2 \approx |f(\Theta)|^2 \\ F(\Theta) &= -2f^*(\Theta)g(\Theta) \\ G(\Theta) &= 2|g(\Theta)|^2. \end{aligned} \quad (32)$$

Der Bornschen Näherung (13) entnehmen wir, ebenfalls für kleine Winkel

$$f(\Theta) = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} f_0(\Theta), \quad g(\Theta) = -\frac{1}{2} (1 - \sqrt{1-\beta^2}) f(\Theta), \quad (33)$$

wobei

$$\beta = \frac{v}{c}, \quad \frac{E-m}{E} = \frac{E_{\text{kin}}}{E} = 1 - \sqrt{1-\beta^2}.$$

f^2 ist gerade der übliche elastische Streuquerschnitt, mit der relativistischen Massenkorrektur versehen, aber ohne Beachtung des Elektronenspins. f^2 ist also genau der in MOLIERES Theorie eingehende Einzelstreuquerschnitt σ . Seine Berechnung ist allgemein unter Berücksichtigung der Abschirmung (ohne Verwendung der Bornschen Näherung) möglich [12].

Wir können uns jetzt der von MOLIERE [6] und BETHE [7] entwickelten Methoden bedienen, um die Integrale (24) zu vereinfachen. Das Streugesetz

$$\sigma = |f(\Theta)|^2 = \frac{4e^4 Z(Z+1)}{(pv)^2} \frac{q(\Theta)}{\Theta^4}$$

enthält den Abschirmungsfaktor $q(\Theta)$, der bei $\Theta \rightarrow 0$ von 1 auf 0 abfällt. Dies geschieht aber erst bei sehr kleinen Winkeln, und eine Folge hiervon ist, daß man das Integral

$$\begin{aligned} \Omega(k) &= 2\pi N z \int_0^\infty d\Theta \Theta \sigma J_0(k\Theta) = 2\chi^2 \int_0^\infty d\Theta \frac{q(\Theta)}{\Theta^3} J_0(k\Theta); \\ \chi^2 &= \frac{4\pi N z e^4 Z(Z+1)}{(pv)^2} \end{aligned} \quad (34)$$

wesentlich vereinfachen kann. Es existiert nämlich für nicht zu dünne Schichten ein Winkel Θ_1 , so daß $J_0(k\Theta)$ für $\Theta < \Theta_1$ durch $1 - \frac{1}{4}k^2\Theta^2$,

und q für $\Theta > \Theta_1$ durch 1 ersetzt werden darf. Man erhält dann

$$\Omega(k) - \Omega(0) = -\frac{1}{4} \chi^2 k^2 [b - \log(\frac{1}{4} \chi^2 k^2)].$$

In $b = \log(\chi/\chi_a)^2 + 1 - C$ ($C = 0,577$ ist die Eulersche Konstante) steckt der für das Streupotential charakteristische Abschirmwinkel χ_a , der durch

$$-\log \chi_a = \lim_{\Theta_1 \rightarrow \infty} \left[\int_0^{\Theta_1} \frac{q(\Theta)}{\Theta} d\Theta + \frac{1}{2} - \log \Theta_1 \right]$$

definiert ist. Statt mit b zu rechnen, ist es für Reihenentwicklungen zweckmäßiger, ein aus

$$B - \log B = b \quad (35)$$

resultierendes B zu verwenden. Die Substitution $u = \sqrt{B} \chi k$ führt dann zu

$$\Omega(u) - \Omega(0) = -\frac{u^2}{4} \left[1 - \frac{1}{B} \log \frac{u^2}{4} \right]. \quad (36)$$

Ω ist in der konsequenten Kleinwinkelnäherung offensichtlich mit unserem ω identisch. Es stellt sich nun heraus, daß die weiteren Funktionen $\varphi, \gamma, \gamma_1$ aus Ω ableitbar sind, und zwar völlig unabhängig von der eben geschilderten Näherung für $\Omega - \Omega_0$.

Setzt man nämlich (32) und (33) in (24) ein, so folgt mit Hilfe von $J'_0(x) = -J_1(x)$; $J'_1(x) = J_0(x) - \frac{1}{x} J_1(x)$; $J_0(x) + J_2(x) = \frac{2}{x} J_1(x)$:

$$\begin{aligned} \varphi(u) &= -\sqrt{s} \Omega'(u) \\ \gamma(u) &= -\frac{s}{2} \left(\Omega''(u) + \frac{1}{u} \Omega'(u) \right) \\ \gamma_1(u) &= -\frac{s}{4u} \Omega'(u). \end{aligned} \quad (37)$$

Hierbei ist

$$s = (1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2 B \chi^2 \quad (38)$$

ein Parameter, der klein gegen Eins ist, solange die Kleinwinkel-Näherung einen Sinn hat. Denn $\sqrt{B} \chi$ sollte als Halbwertswinkel der Moliereschen Gaussverteilung bestimmt kleiner als 25° sein, und das hat $s < (1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2 \cdot 0,2$ zur Folge. Die Abhängigkeit von Schichtdicke ($d_{[g/cm^2]}$), Geschwindigkeit, Kernladung und Atomgewicht entnehmen wir BETHE [7]:

$$\begin{aligned} \chi^2 &= 0,3 \frac{2Z}{A} (Z + 1) \frac{1 - \beta^2}{\beta^4} d_{[g/cm^2]} \\ b &= 2,3 \left(3,8 + 2 \log \frac{1}{10} \beta + \log d_{[g/cm^2]} \right). \end{aligned} \quad (39)$$

Für die Lösung B der transzendenten Gl. (35) kann man die Näherungsformel

$$B = 1,39 + 1,16 \cdot b \quad (40)$$

benutzen, die für $4 < b < 18$ mit einer Genauigkeit von etwa 1% gilt

Wir substituieren in den Integralen (31) $k = u/\sqrt{B}\chi$, $\Theta = \sqrt{B}\chi\vartheta$ und entwickeln unter Beachtung von $\varphi \sim \sqrt{s}$, $\gamma \sim s$, $\gamma_1 \sim s$ π_x bis $s\sqrt{s}$ und π_x bis s^{2*} :

$$\begin{aligned} \frac{2\pi B \chi^2}{P_0} \pi_x = & \int du u J_1(\vartheta u) \varphi e^{\Omega - \Omega_0} + \\ & + \frac{1}{6} \int du u J_1(\vartheta u) \{\varphi^3 + 6\varphi(\gamma_1 - \gamma)\} e^{\Omega - \Omega_0} \quad (41a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{2\pi B \chi^2}{P_0} \pi_x = & \int du u J_0(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} + \frac{1}{2} \int du u J_0(\vartheta u) \{\varphi^2 - 2\gamma\} e^{\Omega - \Omega_0} \\ & + \frac{1}{24} \int du u J_0(\vartheta u) \{\varphi^4 + 12\gamma^2 - 4\varphi^2(3\gamma - 2\gamma_1)\} e^{\Omega - \Omega_0}. \quad (41b) \end{aligned}$$

Ferner ist

$$2\pi B \chi^2 \varrho = \int du u J_0(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} = \bar{\varrho}(\vartheta). \quad (42)$$

Die nullte Näherung ($s=0$) liefert $\pi_x=0$, $\pi_x = P_0 \varrho$; es bleibt die Anfangspolarisation erhalten, was selbstverständlich ist. In erster Näherung findet man mit (37) für das erste Integral bei π_x :

$$\begin{aligned} -\sqrt{s} du u J_1(\vartheta u) (e^{\Omega - \Omega_0})' &= \sqrt{s} \int du \frac{\partial}{\partial u} (u J_1(\vartheta u)) e^{\Omega - \Omega_0} \\ &= \sqrt{s} \vartheta \int du u J_0(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} = \sqrt{s} \vartheta \bar{\varrho}(\vartheta) \end{aligned}$$

und für das zweite Integral bei π_x :

$$\begin{aligned} \frac{s}{2} \int du u J_0(\vartheta u) \left\{ \Omega'^2 + \Omega'' + \frac{1}{u} \Omega' \right\} e^{\Omega - \Omega_0} \\ = \frac{s}{2} \int du \left(-\frac{\partial}{\partial u} (u J_0(\vartheta u)) + J_0(\vartheta u) \right) (e^{\Omega - \Omega_0})' \\ = -\frac{\vartheta^2 s}{2} \int du u J_0(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} = -\frac{\vartheta^2 s}{2} \bar{\varrho}(\vartheta). \end{aligned}$$

* Wegen der Kleinheit von s erhält man auf diese Weise eine gute Annäherung der Integranden in der Nähe des Maximums von $u \exp(\Omega - \Omega_0)$. Dies ist nicht mehr der Fall bei $u=0$; denn die Funktionen γ und γ_1 werden dort trotz kleinem s beliebig groß. Da das Verhalten der Integranden für $u \approx 0$ den Verlauf von π für große ϑ bestimmt, können wir von einer Entwicklung nach s für solche ϑ keine genauen Resultate verlangen (vgl. Abschnitt VI); die Potenzreihe in s konvergiert dann nicht mehr gleichmäßig.

Dabei wurden dieselben Beziehungen zwischen den Bessel-Funktionen wie oben verwendet, außerdem $e^{\Omega-\Omega_0} \rightarrow 0$ mit $u \rightarrow \infty$.

Wir bekommen wegen (42)

$$\pi_y = P_0 \left| \bar{s} \vartheta \right| \varrho, \quad \pi_z = P_0 \left(1 - \frac{s \vartheta^2}{2} \right) \varrho$$

oder

$$P_x = P_0 \sqrt{s} (\vartheta + O(s)); \quad P_z = P_0 \left(1 - \frac{s \vartheta^2}{2} + O(s^2) \right) \quad (43)$$

und damit

$$P^2 = P_x^2 + P_z^2 = P_0^2 (1 + O(s^2)). \quad (44)$$

Man sieht hieran, daß der Depolarisationseffekt bei der Vielfachstreuung klein ist, da er höchstens quadratisch in s sein kann. Ferner stellt sich heraus, daß der anfangs longitudinale Polarisationsvektor in der Vielfachstreuungsebene um den Winkel

$$P_x/P = \sqrt{s} \vartheta = (1 - \sqrt{1 - \beta^2}) \Theta \quad (45)$$

gedreht wird, und dieser ist mit dem bei der Einzelstreuung ausgerechneten Winkel (14) identisch. Damit wird — jedenfalls im Gültigkeitsbereich der Kleinwinkelnäherung — die Hypothese von HEINTZE [1] gestützt, wonach die Vielfachstreuung auf eine longitudinale Elektronenpolarisation genau so wirkt wie ein transversales elektrostatisches Feld.

VI. Depolarisation und Korrektur an der Mitdrehung

Obwohl bei der Einzelstreuung der Polarisationsvektor eine reine Drehung erfährt, kann doch die Vielfachstreuung eine Depolarisation ergeben. Sie kommt dadurch zustande, daß die Elektronen, die die Streufolie unter einem gegebenen Winkel verlassen, wegen ihrer verschiedenen zurückgelegten Wege individuelle Polarisationsvektoren haben. Diese besitzen zwar alle die gleiche Länge P_0 , zeigen aber in etwas verschiedene Richtungen.

Bei der Berechnung der Depolarisation muß man im Gebrauch der Kleinwinkelnäherung etwas vorsichtig sein. Um das einzusehen, rechnen wir zunächst unter den gleichen Annahmen wie im vorigen Abschnitt die zweite Näherung in (41) aus, d.h. die Integrale

$$I_x = \int du u J_1(\vartheta u) \{ \varphi^3 + 6\varphi(\gamma_1 - \gamma) \} e^{\Omega - \Omega_0}$$

$$I_z = \int du u J_0(\vartheta u) \{ \varphi^4 + 12\gamma^2 - 4\varphi^2(3\gamma - 2\gamma_1) \} e^{\Omega - \Omega_0}.$$

Mit Hilfe von (37) findet man nach einigen partiellen Integrationen

$$\begin{aligned}
 I_x &= s \sqrt{s} \left(-\frac{\vartheta}{2} + \frac{\vartheta}{2} \tau - \vartheta^3 \bar{\varrho} + \right. \\
 &\quad \left. + \int du J_1(\vartheta u) \left\{ u \Omega''' + \frac{3}{2} \left(\Omega'' - \frac{\Omega'}{u} \right) \right\} e^{\Omega - \Omega_0} \right) \\
 I_z &= s^2 \left(2\vartheta^2 - 2\vartheta^2 \tau + \vartheta^4 \bar{\varrho} - \vartheta \int du J_1(\vartheta u) \times \right. \\
 &\quad \times \left\{ u \Omega''' + 3 \left(\Omega'' - \frac{\Omega'}{u} \right) \right\} e^{\Omega - \Omega_0} - \\
 &\quad \left. - 3 \int du J_0(\vartheta) \left\{ u \Omega''' + \Omega'' - \frac{\Omega'}{u} \right\} (e^{\Omega - \Omega_0})' \right). \quad (46)
 \end{aligned}$$

Neben $\bar{\varrho}$ aus (42) tritt hierbei die Funktion

$$\tau(\vartheta) = \vartheta \int du J_1(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} \quad (47)$$

auf. In (46) hätte man noch weitere Terme, an den Grenzen 0 und ∞ genommen, hinschreiben müssen. Dieselben fallen jedoch unter der Voraussetzung

$$e^{\Omega - \Omega_0} \rightarrow 0 \quad \text{für } u \rightarrow \infty \quad \text{und} \quad \Omega' \rightarrow 0, \quad u^2 \Omega'' \rightarrow 0 \quad \text{für } u \rightarrow 0$$

weg.

Wir setzen jetzt für $\Omega - \Omega_0$ (36) ein \star und erhalten

$$u \Omega''' = \Omega'' - \frac{\Omega'}{u} = \frac{1}{B}$$

und für (46):

$$\begin{aligned}
 \frac{I_x}{6} &= s \sqrt{s} \vartheta \left(-\frac{1}{12} - \frac{\vartheta^2}{6} \bar{\varrho} + \frac{1}{12} \left(\vartheta^2 + \frac{5}{B} \right) \frac{\tau}{\vartheta^2} \right) \\
 \frac{I_z}{24} &= s^2 \left(\frac{\vartheta^2}{12} + \frac{\vartheta^4}{24} + \frac{1}{4B} - \frac{1}{12} \left(\vartheta^2 + \frac{5}{B} \right) \tau \right), \quad (48)
 \end{aligned}$$

im Falle der Vorwärtsstreuung ergibt das $P = P_0(1 + s^2/4B)$, und das ist ein offensichtlich sinnloses Resultat, denn die Vielfachstreuung kann nur zu einer Verringerung des Polarisationsgrades führen. Um die Ursache dieses Widerspruches zu finden, ist es notwendig, die Annahmen zu überprüfen, die in der Kleinwinkel-Näherung stecken. Allgemein läßt sich sagen, daß die Näherungsgleichungen (21) die exakten statistischen Gleichungen für ein etwas abgeändertes Streugesetz sind. Bei den Impulsen läuft diese Näherung darauf hinaus, daß jeder Stoß nur die x - und y -Komponente von \vec{k} ändert: Man ersetzt die elastische Streuung an isotropen Zentren durch eine etwas unelastische Streuung

\star Dann geht allerdings $e^{\Omega - \Omega_0}$ für $u \rightarrow \infty$ keineswegs gegen Null; der entstehende Fehler ist jedoch vernachlässigbar, wenn B nicht zu klein wird. Wir verweisen auf die diesbezügliche Abschätzung bei BETHE [7] und Fußnote von S. 488.

an etwas anisotropen Zentren. Solange Energieänderungen nicht interessieren (die näherungsbedingten dürften sich ohnehin im statistischen Mittel wieder ausgleichen) ist das sicher eine gute Näherung.

Desgleichen bedeutet die Ersetzung von $\vec{n} \rightarrow \vec{n} \times \vec{n}'$ durch $\vec{e} \times (\vec{\Theta}' - \vec{\Theta})$, daß der Spin stets um eine Achse gedreht wird, die in der x - y -Ebene liegt. Wir müssen aber bei diesen kleinen Abänderungen des Streuvorganges darauf achten, daß die Bedingung $P' = P$ bei jeder Einzelstreuung streng erhalten bleibt. Für zwei Funktionen $f(\Theta)$ und $g(\Theta)$ mit f^*g reell und sonst beliebig und für einen beliebigen Vektor \vec{n} gilt nun immer die Identität (10) mit $D=0$, und damit folgt $P' = P$ (12b). Man darf daher im Sinne der Kleinwinkel-Näherung z.B. in (13) $f(\Theta)$ abändern, indem man den gegen f_0 langsam veränderlichen Faktor $1 - \frac{E-m}{2E}(1 - \cos\Theta)$ durch seinen Wert Eins beim Streuwinkel Null ersetzt. Ebenso kann \vec{n} durch $\vec{e} \times \vec{\Theta}$ approximiert werden. Man darf aber nicht auf Grund des scheinbar gleichen Argumentes $\Theta^2 |g(\Theta)|^2$ gegenüber $|f(\Theta)|^2$ vernachlässigen, wie das in (32) geschehen ist. Tut man es doch, so wird die Identität (10) zerstört, und an die Stelle von $P' = P$ tritt, wie leicht auszurechnen ist:

$$P'^2 = P^2 + 4\Theta^2 [\vec{P} \times \vec{\Theta}]^2 \frac{|f|^4}{|g|^4}.$$

Jede Einzelstreuung dehnt also den Polarisationsvektor künstlich, und im statistischen Mittel ist dieser, wenn auch kleine Effekt nicht mehr rückgängig zu machen.

Wir sind jetzt in der Lage, (48) zu korrigieren. $J = |f|^2 + \Theta^2 |g|^2$ hat nach (24) und (33) zur Folge, daß an Stelle von $\omega = \Omega$ nun

$$\omega = \Omega + \frac{1}{2} \gamma \quad (49)$$

zu setzen ist; dies liefert mit (36) und (37)

$$\begin{aligned} \varphi &= -\sqrt{s} \left(\omega' + \frac{s}{2B} \frac{1}{u} \right) \\ \gamma &= -\frac{s}{2} \left(\omega'' + \frac{1}{u} \omega' \right) \\ \gamma_1 &= -\frac{s}{4u} \left(\omega' + \frac{s}{2B} \frac{1}{u} \right). \end{aligned} \quad (50)$$

ω_0 würde nach (49) unendlich werden. Das liegt daran, daß der mit (36) berechnete Ausdruck für γ bei $\omega = 0$ nicht mehr richtig ist. Da $u \approx 0$ den großen Streuwinkeln (die wir ausschließen) entspricht, macht das an allen anderen Stellen außer (49), in denen γ vorkommt, nichts aus. Man kann jedoch in (31)

$$\omega - \omega_0 = \Omega - \Omega_0 + \frac{1}{2} \gamma$$

setzen. Die Konstante $-\frac{1}{2}\gamma_0$, die rechts noch stehen müßte, kürzt sich bei der Berechnung der Polarisierung ohnehin wieder heraus.

In (41) ist $\Omega - \Omega_0$ durch $\omega - \omega_0$ zu ersetzen und für φ , γ , γ_1 (50) einzuführen. Dies ändert an der ersten Näherung bezüglich s überhaupt nichts, denn $\omega - \omega_0$ unterscheidet sich von $\Omega - \Omega_0$ nur durch das in s lineare γ .

Dagegen gibt es Beiträge zur zweiten Näherung; φ im ersten Integral von (41a) und $\frac{1}{2}\varphi^2$ im zweiten Integral von (41b) liefern nämlich

$$-\frac{s\sqrt{s}}{2B} \int du J_1(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0};$$

$$\frac{s^2}{2B} \int du J_0(\vartheta u) (e^{\Omega - \Omega_0})' = \frac{s^2}{2B} \left(-1 + \vartheta \int du J_1(\vartheta u) e^{\Omega - \Omega_0} \right).$$

An die Stelle von (48) tritt somit die korrigierte zweite Näherung

$$\frac{I_x}{6} - \frac{s\sqrt{s}}{2B} \tau/\vartheta = -s\sqrt{s} \vartheta \left(\frac{1}{12} + \frac{\vartheta^2}{6} \bar{\varrho} + \frac{1}{12} \left(\frac{1}{B} - \vartheta^2 \right) \tau/\vartheta^2 \right)$$

$$\frac{I_z}{24} + \frac{s^2}{2B} (-1 + \tau) = s^2 \left(\frac{\vartheta^2}{12} + \frac{\vartheta^4}{24} \bar{\varrho} - \frac{1}{4B} + \frac{1}{12} \left(\frac{1}{B} - \vartheta^2 \right) \tau \right). \quad (51)$$

Zusammen mit (43) folgt

$$P_x = P_0 \sqrt{s} \vartheta \left(1 - s a(\vartheta) - \frac{s}{6} \vartheta^2 \right)$$

$$P_z = P_0 \left(1 - \frac{s \vartheta^2}{2} + s^2 \left[\vartheta^2 a(\vartheta) + \frac{\vartheta^4}{24} - \frac{1}{4B \bar{\varrho}} \right] \right). \quad (52)$$

Hierbei ist

$$a(\vartheta) = \frac{1}{12} \left(\frac{1 - \tau}{\bar{\varrho}} + \frac{1}{B} \frac{\tau}{\vartheta^2 \bar{\varrho}} \right). \quad (53)$$

Für den Polarisationsgrad bekommen wir nach (52):

$$P = P_0 \left(1 - \frac{s^2}{4B \bar{\varrho}} \right). \quad (54)$$

Wir finden eine Depolarisation; sie ist wegen des Faktors s^2 auch in den ungünstigsten Fällen sehr geringfügig.

Experimentell ist vor allem die zum Impuls senkrechte Komponente P_{\perp} von \vec{P} von Bedeutung. Es sei η der Winkel zwischen \vec{P} und der z -Achse. Dann ist

$$P_x = P \sin \eta \quad \text{und} \quad P_{\perp} = -P \sin(\Theta - \eta). \quad (55)$$

Wir berechnen η bis zu Gliedern der Ordnung $s\sqrt{s}$; die Depolarisation spielt in dieser Näherung keine Rolle. Löst man (55) nach η auf, so erhält man mit (52)

$$\eta = \sqrt{s} \vartheta (1 - s a(\vartheta)) = (1 - \sqrt{1 - \beta^2}) \Theta (1 - s a(\vartheta)); \quad (56)$$

$1 - sa(\vartheta)$ ist der Korrekturfaktor, der am elektrostatischen Mitdrehen des Spins [vgl. Gl. (45)] anzubringen ist.

Zur Auswertung benötigen wir die Funktionen $\bar{q}(\vartheta)$ und $\tau(\vartheta)$. $\bar{q}(\vartheta)$, die Verteilungsfunktion in Winkleinheiten $|B\chi|$, ist von MOLIERE nach fallenden Potenzen von B entwickelt worden:

$$\bar{q}(\vartheta) = f^{(0)}(\vartheta) + \frac{1}{B} f^{(1)}(\vartheta) + \frac{1}{B^2} f^{(2)}(\vartheta) + \dots, \quad (57)$$

dabei ist $f^{(0)}(\vartheta) = 2e^{-\vartheta^2}$. Wie man (47) und (42) entnimmt, gilt

$$\tau(\vartheta) = \int_0^\vartheta d\vartheta' \vartheta' \bar{q}(\vartheta') = \tau^{(0)}(\vartheta) + \frac{1}{B} \tau^{(1)}(\vartheta) + \frac{1}{B^2} \tau^{(2)}(\vartheta) + \dots,$$

wobei

$$\tau^{(n)} = \int_0^\vartheta d\vartheta' \vartheta' f^{(n)}(\vartheta'),$$

$$\tau^{(0)} = 1 - e^{-\vartheta^2}.$$

$\tau(\vartheta)$ ist demnach die Wahrscheinlichkeit, daß das Teilchen in einen Kegel mit der Öffnung ϑ gestreut wird. $a(\vartheta)$ ist daher immer positiv; die Korrektur vermindert das Mitdrehen des Spins, vergrößert

also $|P_\perp|$. Tabelle 1 enthält die Funktionen $f^{(n)}$ und $\tau^{(n)}$; $f^{(1)}$ und $f^{(2)}$ wurden dabei BETHE [7] entnommen. Fig. 1 zeigt $a(\vartheta)$ im Winkelbereich $0 < \vartheta < 2$.

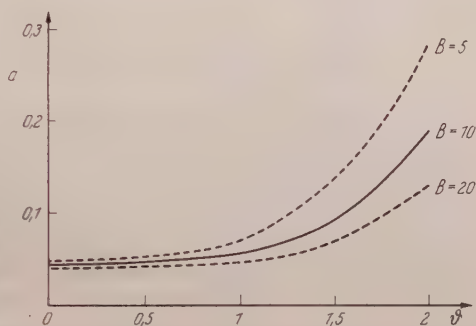


Fig. 1. Korrektur am elektrostatischen Mitdrehen des Spins

Tabelle 1. Werte der Funktionen $f^{(n)}$ und $\tau^{(n)}$

$f^{(0)}$	$f^{(1)}$	$f^{(2)}$	ϑ	$\tau^{(0)}$	$\tau^{(1)}$	$\tau^{(2)}$
2,000	0,846	2,493	0,0	0,000	0,000	0,000
1,922	0,704	2,069	0,2	0,039	0,098	0,334
1,704	0,344	1,049	0,4	0,148	0,116	0,494
1,395	-0,078	-0,004	0,6	0,302	0,164	0,404
1,055	-0,398	-0,607	0,8	0,473	0,059	0,252
0,736	-0,529	-0,636	1,0	0,632	-0,135	0,003
0,474	-0,477	-0,309	1,2	0,763	-0,367	-0,192
0,282	-0,319	0,053	1,4	0,859	-0,571	-0,232
0,155	-0,140	0,242	1,6	0,923	-0,699	-0,140
0,078	-0,001	0,239	1,8	0,960	-0,736	0,017
0,037	0,078	0,132	2,0	0,982	-0,698	0,153
0,016	0,105	0,020	2,2	0,992	-0,618	0,219
0,006	0,101	-0,047	2,4	0,997	-0,522	0,209
0,002	0,083	-0,065	2,6	0,999	-0,430	0,151
0,001	0,062	-0,055	2,8	1,000	-0,353	0,087

Der Korrekturfaktor für $\vartheta \rightarrow 0$ wird $1 - \frac{s}{24} (2\bar{\varrho}(0) + 1/B)$. Die dadurch bewirkte Abweichung ist klein und erreicht bei $s = 0,2$ kaum 1%. Mit wachsendem Winkel steigt auch die Korrektur an.

Es sei nochmals darauf hingewiesen, daß man die Formeln dieses Abschnittes nicht bis zu beliebig großen Werten von ϑ verwenden kann, weil dann die Entwicklung nach s versagt (vgl. Fußnote von S. 488). Das sieht man unmittelbar an der Formel (54) für P , die für hinreichend großes ϑ [und damit sehr kleines $\bar{\varrho}(\vartheta)$] schließlich zu negativen Werten für einen Absolutbetrag führen würde. Praktisch macht das nicht viel aus, da man bei der Erzeugung einer transversalen Polarisation durch Vielfachstreuung schon aus Intensitätsgründen kaum über $\vartheta = 2$ hinausgehen wird.

VII. Die Eigendepolarisation eines Präparates

Das Präparat bestehe aus einer Schicht der Dicke d , in der die β -Strahler homogen verteilt sind. Dies bedingt eine gewisse Depolarisation der austretenden β -Teilchen. Sie kommt dadurch zustande, daß Elektronen, die ursprünglich in eine um den Winkel Θ von der Beobachtungsrichtung abweichenden Richtung emittiert worden sind, durch Vielfachstreuung in die Beobachtungsrichtung gedreht werden können, ohne daß der Polarisationsvektor diese Drehung völlig mitmacht. Dabei mitteln sich die Transversalkomponenten von \vec{P} heraus, und man beobachtet einen longitudinalen Polarisationsvektor geringerer Länge als am Erzeugungsort der Elektronen. Im allgemeinen wählt man die Schicht so dünn, daß nur für kleine Θ die Elektronen mit merklicher Wahrscheinlichkeit in die Beobachtungsrichtung zurückgestreut werden. Wir können dann setzen:

$$\langle P \rangle = \frac{2\pi}{d} \int_0^d dt \int_0^\infty d\Theta \Theta \varrho(\Theta) P_{||}(\Theta) = \frac{1}{d} \int_0^d dt \int_0^\infty d\vartheta \vartheta \bar{\varrho}(\vartheta) P_{||}(\vartheta). \quad (57)$$

Es genügt hier, in der niedrigsten Näherung in s zu rechnen. Mit (43) erhält man:

$$P_{||} = P_0 \left(1 - \frac{1 - \beta^2}{(1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2} \frac{s \vartheta^2}{2} \right) \quad (58)$$

und

$$\langle P \rangle = P_0 - P_0 \frac{1 - \beta^2}{(1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2} \frac{1}{2d} \int_0^d dt s(t) \overline{\vartheta^2}.$$

Dabei ist

$$\overline{\vartheta^2} = \int_0^\infty d\vartheta \vartheta^3 \bar{\varrho}(\vartheta) = 1 + \frac{1}{B} \int d\vartheta \vartheta^3 f^{(1)}(\vartheta) + \dots$$

Wir beschränken uns auf das erste Glied dieser Reihe*.

Die verbleibende Integration über $s(t)$ muß die komplizierte t -Abhängigkeit von B berücksichtigen. Für $t=0$ ist B gar nicht mehr definiert, weil die Molieresche Theorie nicht für sehr dünne Schichten gilt. Da aber $s(t)$ t noch als Faktor enthält, können wir die Näherungsformel (40) verwenden, die jedenfalls in dem Gebiet, das einen wesentlichen Beitrag zum Integral liefert, gut ist:

$$s(t) = 0,3 (1 - \sqrt{1 - \beta^2})^2 \frac{1 - \beta^2}{\beta^4} \frac{2Z}{A} (Z + 1) \times \\ \times \left[1,31 + 2,53 \left(3,8 + 2 \log_{10} \frac{1}{\beta} \right) + 1,1 \log t \right] t.$$

Damit liefert (58):

$$\frac{JP}{P_0} = \frac{P_0 - \langle P \rangle}{P_0} = 3,8 \left(\frac{1 - \beta^2}{\beta^2} \right)^2 \frac{Z(Z + 1)}{A} \left(4,1 + \log_{10} \frac{d}{\beta^2} \right) d. \quad (59)$$

Die Theorie der Vielfachstreuung gilt für $B \gtrsim 4$; zusammen mit (39) und (40) bedeutet das, daß die Depolarisationsformel (59) nur für Schichtdicken $d \gtrsim \beta^2 \cdot 10^{-3}$ [g/cm²] richtig ist. Als obere Grenze erhält man aus $B\chi^2 \lesssim 0,2$ mit $B \approx 10$:

$$d \lesssim \frac{A}{30Z(Z + 1)} \frac{\beta^4}{1 - \beta^2} \text{ [g/cm}^2\text{]}.$$

Wir danken den Herren L. WALDMANN, J. HEINTZE und G. MOLIERE für wertvolle Diskussionen.

Literatur

- [1] HEINTZE, J.: Z. Physik **148**, 560 (1957). — [2] FRAUENFELDER, H., R. BONE, E. v. GOELER, N. LEVINE, H. R. LEWIS, R. PEACOCK, A. ROSSI and G. DE PASQUALI: Phys. Rev. **106**, 386 (1957). — [3] TOLHOEK, H. A.: Rev. Mod. Phys. **28**, 277 (1956). — [4] WOLFENSTEIN, L.: Ann. Rev. Nucl. Sci. **6** (1956). — [5] WALDMANN, L.: Z. Naturforsch. **12a**, 660 (1957). — Handbuch der Physik, Bd. XII (im Erscheinen). — [6] MOLIERE, G.: Z. Naturforsch. **3a**, 78 (1948). — [7] BETHE, H. A.: Phys. Rev. **89**, 1256 (1953). — [8] MOTT, N. F., and H. S. W. MASSEY: Atomic Collisions, S. 74ff. Oxford 1950. — [9] SHERMAN, N.: Phys. Rev. **103**, (1601), (1956). — [10] ALLEN, K. R., K. PHILLIPS and F. WHITTAKER: Proc. Phys. Soc. Lond. A **70**, 536 (1957). — [11] JAUCH, J. M., and F. ROHRlich: Theory of Photons and Electrons, S. 467. Cambridge, Mass. 1955. — [12] MOLIERE, G.: Z. Naturforsch. **2a**, 133 (1947).

* Das zweite ist so, wie es dasteht, unendlich da $f^{(1)}(\vartheta)$ für $\vartheta \rightarrow \infty$ nur wie ϑ^{-4} verschwindet. Man muß sich dann daran erinnern, daß man sinngemäßerweise nur bis $\Theta = \pi$, also $\vartheta = (1 - \sqrt{1 - \beta^2}) \pi / \sqrt{s}$ integrieren darf, und daß das Integral dann tatsächlich klein wird.

Anhang

Wir geben hier den Vektor $\vec{\pi} = \varrho(\vec{\Theta}, z) \vec{P}(\vec{\Theta}, z)$ für den Fall an, daß der senkrecht auf die Schicht fallende Strahl eine beliebige Polarisation \vec{P}_0 besitzt:

$$\begin{aligned}\pi_x &= \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk k e^{w-w_0} \left(\frac{1}{2} P_{0x} e^{-\gamma_1} \left\{ \Im \vartheta w_1 - \frac{\gamma_1}{w_1} \Im \sin w_1 \right\} [J_0(k\Theta) + J_2(k\Theta)] + \right. \\ &\quad + \frac{1}{2} P_{0x} e^{-\gamma+\gamma_1} \left\{ \Im \vartheta w_2 + \frac{\gamma_1}{w_2} \Im \sin w_2 \right\} [J_0(k\Theta) - J_2(k\Theta)] + \\ &\quad \left. + P_{0z} e^{-\gamma+\gamma_1} \frac{\varphi}{w_2} \Im \sin w_2 \cdot J_1(k\Theta) \right) \\ \pi_y &= \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk k e^{w-w_0} \left(\frac{1}{2} P_{0y} e^{-\gamma_1} \left\{ \Im \vartheta w_1 - \frac{\gamma_1}{w_1} \Im \sin w_1 \right\} [J_0(k\Theta) - J_2(k\Theta)] + \right. \\ &\quad + \frac{1}{2} P_{0y} e^{-\gamma+\gamma_1} \left\{ \Im \vartheta w_2 + \frac{\gamma_1}{w_2} \Im \sin w_2 \right\} [J_0(k\Theta) + J_2(k\Theta)] + \\ &\quad \left. + e^{-\gamma+\gamma_1} \frac{\delta}{w_1} \Im \sin w_1 \cdot J_1(k\Theta) \right) \\ \pi_z &= \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dk k e^{w-w_0-\gamma+\gamma_1} \left(P_{0z} \left\{ \Im \vartheta w_2 - \frac{\gamma_1}{w_2} \Im \sin w_2 \right\} J_0(k\Theta) - \right. \\ &\quad \left. - P_{0x} \frac{\varphi}{w_2} \Im \sin w_2 \cdot J_1(k\Theta) \right).\end{aligned}$$

Hierbei ist $w_1 = \sqrt{\gamma_1^2 - \delta^2}$ und $w_2 = \sqrt{\gamma_1^2 + \varphi^2}$. Man hat bei den Formeln zu beachten, daß sich das Bezugssystem mit der Beobachtungsrichtung dreht: $\vec{\Theta}$, $\vec{e} \times \vec{\Theta}$ und \vec{e} bilden die x -, y - und z -Achse.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Göttingen

Zur Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten von Alkalihalogenidkristallen*

Von

G. LEIBFRIED und H. HAHN**

Mit 10 Figuren im Text

(Eingegangen am 19. November 1957)

Die elastischen Konstanten von Alkalihalogenidkristallen werden als Funktionen der Temperatur gittertheoretisch berechnet. Dabei werden folgende Näherungen verwendet:

1. Der Schwingungsanteil der freien Energie wird durch die freie Energie eines Systems von unabhängigen harmonischen Oszillatoren mit verzerrungsabhängigen Frequenzen ersetzt.
2. Das Gitterspektrum wird durch einen „Einstein-Term“ dargestellt: alle Ersatzoszillatoren schwingen mit der gleichen Frequenz.
3. Die thermischen Größen werden nach Potenzen der mittleren Schwingungsenergie pro Freiheitsgrad entwickelt; quadratische und höhere Glieder dieser Entwicklung werden vernachlässigt.
4. Die Kräfte zwischen den Ionen werden durch Coulomb-Kräfte und abstoßende Zentralkräfte zwischen nächsten Nachbarn angenähert.

Vom Zentralpotential der abstoßenden Kräfte kommen infolge Näherung 3 nur die ersten vier Ableitungen an derjenigen Stelle vor, die einem statischen Gleichgewicht im Kristall (Minimum des potentiellen Anteils der freien Energie) entspricht. Sie werden entweder aus dem Born-Mayerschen Potentialansatz ermittelt (CsCl, KCl) oder an experimentell zugängliche Größen angepaßt (KCl, KBr, NaCl). Die Ergebnisse der Rechnung stimmen mit Meßergebnissen von ROSE u. a. qualitativ gut überein. Bei hohen Temperaturen nehmen die isothermen elastischen Konstanten linear mit der Temperatur ab, bei tiefen Temperaturen werden sie nahezu temperaturunabhängig. c_{12} und c_{44} sind kleiner und weniger temperaturabhängig als c_{11} .

1. Einleitung

M. BORN u. Mitarb. [1] und G. LEIBFRIED [2] haben für die Berechnung der thermischen Daten von primitiven Gittern mit Zentralkraftwechselwirkung ein einfaches Näherungsverfahren entwickelt. Dieses Verfahren können wir hier ohne wesentliche Abänderungen zur

* Herrn Professor Dr. MAX BORN zum fünfundsiebzigsten Geburtstag gewidmet.

** Jetzt: Lehrstuhl für physikalische Grundlagen der Reaktorwerkstoffe, Technische Hochschule Aachen.

Berechnung der thermischen Ausdehnung und der elastischen Konstanten der *nicht primitiven* Gitter der Alkalihalogenide benutzen.

Im Alkalihalogenidgitter ist nämlich (wie in primitiven Gittern) jedes Ion Symmetriezentrum, auch *nach* einer makroskopisch homogenen Verzerrung (z. B. nach einer Scherung, s. Fig. 1) des gesamten Kristalls. Die mittleren Lagen, um die die Gitteratome thermisch schwingen, sind (abgesehen von einer starren Bewegung des Gesamtkristalls) eindeutig durch den mittleren Abstand L nächster Nachbarn (d. h. durch die Dichte) in irgendeinem beliebig wählbaren, kubisch symmetrischen Zustand und durch die Variablen v_{ik} der homogenen Verzerrung* aus diesem Ausgangszustand bestimmt**.

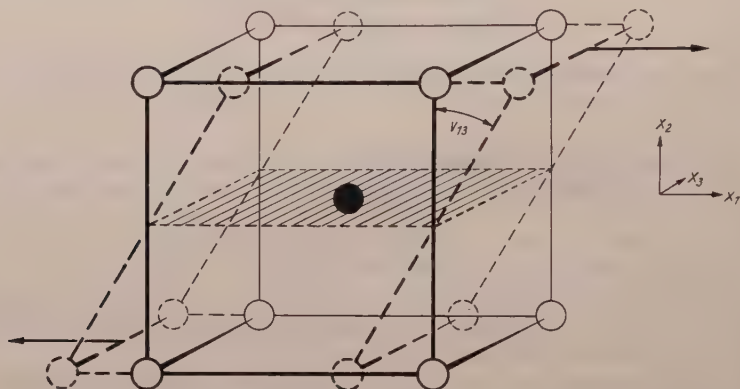


Fig. 1. Scherung $v = \begin{pmatrix} 0 & 0 & v_{13} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$ im CsCl-Gitter. Bei kleiner Scherung ist v_{13} der Schubwinkel

Indem wir uns auf die Betrachtung homogener Zustände beschränken, wählen wir L , die v_{ik} und die Temperatur T als Zustandsvariable.

Die freie Energie F_g des Kristalls (hier pro Elementarzelle gerechnet) ist eine Funktion dieser Zustandsvariablen. Die Taylor-Entwicklung dieser Funktion nach den Verzerrungsvariablen hat wegen der Unabhängigkeit der freien Kristallenergie von Translationen und Drehungen des gesamten Gitters und wegen der kubischen Symmetrie des Ausgangs-

* Definition des Tensors $v = ((v_{ik}))$, $i, k = 1, 2, 3$ der homogenen Verzerrung: Ein Atom, das im unverzerrten Gitter am Ort ξ sitzt, befindet sich im verzerrten Gitter am Ort $\xi + v\xi$. v ist von ξ unabhängig.

** L und die v_{ik} sind jedoch ihrerseits durch die mittleren Lagen *nicht* eindeutig bestimmt. Zum Beispiel wird ein Kristall aus einem durch „ $L = L_1$, $v_{ik} = 0$ “ gekennzeichneten Ausgangszustand kubischer Symmetrie durch formtreue Volumvergrößerung in einen Zustand gebracht, den man sowohl durch „ $L = L_1 + \delta L$, $v_{ik} = 0$ “ als auch durch „ $L = L_1$, $v_{ik} = \delta_{ik} \cdot \frac{\delta L}{L}$ “ kennzeichnen kann.

zustandes $(L, 0, T)$ die Form*

$$F_z(L, v_{ik}, T) = F_0(L, T) + F_1(L, T) \cdot \sum_i (\varepsilon_{ii} + \frac{1}{2} \sum_j v_{ij}^2) + \left. \begin{aligned} &+ \frac{1}{2} F_{11}(L, T) \cdot \sum_i \varepsilon_{ii}^2 + \\ &+ \frac{1}{2} F_{12}(L, T) \cdot \sum_{i \neq k} \varepsilon_{ii} \varepsilon_{kk} + \frac{1}{2} F_{44}(L, T) \cdot \sum_{i \neq k} \varepsilon_{ik}^2 + \\ &+ \dots \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

mit

$$\varepsilon_{ik} = \frac{1}{2} (v_{ik} + v_{ki})$$

(die nicht ausgeschriebenen Glieder sind von dritter und höherer Ordnung in den v_{ik}).

An Hand von Gl. (1) können wir nun das Programm für die Berechnung der thermischen Daten aufstellen: Zunächst haben wir, indem wir uns irgendeinen Zustand mit den dazugehörigen mittleren Lagen fest vorgeben denken, die freie Energie als Funktion $F_z(L, v_{ik}, T)$ der Zustandsvariablen gittertheoretisch zu berechnen.

Irgendein beliebiger Zustand (L, v_{ik}, T) wird sich im allgemeinen nur unter äußeren Spannungen aufrechterhalten lassen. Wir suchen zunächst denjenigen Zustand, in dem der Kristall *ohne* das Vorhandensein von äußeren Spannungen bei einer gegebenen Temperatur T im thermischen Gleichgewicht ist. Er ist (abgesehen vom Atmosphärendruck bzw. vom Dampfdruck, die ihres kleinen Einflusses wegen hier unberücksichtigt bleiben sollen) der tatsächliche Ausgangszustand einer elastischen Verformung. Er bestimmt sich aus der Bedingung für ein Extremum der freien Energie:

$$\left. \frac{\partial F_z}{\partial v_{ik}} \right|_L = 0 \quad \text{für alle } i, k. \quad (2)$$

Diese führt [vgl. (1)] auf einen kubisch-symmetrischen Zustand mit

$$F_1(L, T) = \frac{\partial F_z}{\partial v_{11}} = \frac{\partial F_z}{\partial \varepsilon_{11}} = 0 \quad (3a)$$

oder (siehe Fußnote!)

$$\left. \frac{\partial F_z}{\partial L} \right|_{v_{ik}=0} = \frac{\partial F_0}{\partial L} = 0. \quad (3b)$$

* Vgl. z.B. [2], S. 178ff., 238ff. — Zwischen den Koeffizienten dieser Entwicklung bestehen, wie man aus ** S. 498 leicht ersieht, die Beziehungen

$$F_1 = \left. \frac{\partial F_z}{\partial v_{11}} \right|_{v=0} = \frac{L}{3} \left. \frac{\partial F_z}{\partial L} \right|_{v=0} = \frac{L}{3} \frac{\partial F_0}{\partial L}$$

und

$$F_{11} + 2F_{12} + F_1 = \left[\frac{\partial^2 F_z}{\partial v_{11}^2} + 2 \frac{\partial^2 F_z}{\partial v_{12}^2} \right]_{v=0} = \frac{L^2}{3} \cdot \left. \frac{\partial^2 F_z}{\partial L^2} \right|_{v=0}.$$

Aus (3) ergibt sich der Gleichgewichtsabstand L_g nächster Nachbarn als Funktion der Temperatur und damit die thermische Ausdehnung des Kristalls.

Kleine Verzerrungen aus dem spannungsfreien Zustand und die dabei auftretenden Spannungen behandelt die klassische Elastizitätstheorie. In ihr werden in (1) alle Glieder höherer als zweiter Ordnung vernachlässigt. Die freie Verformungsenergie $F_z(L_g, v_{ik}, T) - F_0(L_g, T)$ wird dann [da $F_1(L_g, T)$ verschwindet] eine homogen quadratische Form in den *symmetrisierten* Verzerrungsvariablen ε_{ik} allein.

Die Koeffizienten dieser Form liefern die isothermen elastischen Konstanten (genauer: die isothermen Voigtschen elastischen Moduln) als Funktionen der Temperatur:

$$c_{\mu\nu}(T) = \frac{F_{\mu\nu}(L_g(T), T)}{V_z(L_g(T), T)} \quad (4)$$

$[V_z(L)$ ist das Volumen der Elementarzelle im Zustand $(L, 0, T)]$.

2. Die statistisch-mechanische Berechnung der freien Energie

a) Die adiabatische Näherung

Wir setzen zunächst die übliche „adiabatische Näherung“ voraus: Es gibt für die Bewegungen der Kerne der N Gitteratome (Koordinaten: $\mathbf{x}^m, m=1, \dots, N$ mit den Komponenten x_1^m, x_2^m, x_3^m) eine potentielle Energie $\Phi(x_1^1, \dots, x_3^N)$.

b) Die quasiharmonische Näherung

Durch den mittleren Abstand L nächster Nachbarn und durch die Matrix $v = ((v_{ik}))$ der homogenen Verzerrung (s. Einleitung) geben wir die mittleren Kernlagen \mathbf{X}^m vor. Die Auslenkungen der Kerne aus diesen Lagen nennen wir \mathbf{s}^m :

$$\mathbf{s}^m = \mathbf{x}^m - \mathbf{X}^m(L, v_{ik}).$$

Wir entwickeln die potentielle Energie

$$\Phi(x_1^1, \dots, x_3^N) = \Phi(X_1^1 + s_1^1, \dots, X_3^N + s_3^N) \quad (5)$$

unseres Kristalls nach Potenzen der Auslenkungen s_i^m . Unter der Annahme, daß die thermischen Schwankungen der Kernorte um die mittleren Lagen gering sind, vernachlässigen wir in dieser Entwicklung die Glieder höherer als zweiter Ordnung. So wird

$$\Phi = \Phi^{(h)} = \Phi^{(0)}(L, v) + \sum_{m,i} \Phi_i^m(L, v) s_i^m + \frac{1}{2} \sum_{\substack{m,i \\ n,k}} \Phi_{ik}^{mn}(L, v) s_i^m s_k^n. \quad (6)$$

Diese Näherung sei hier im Unterschied zur harmonischen Näherung, bei der Φ nur um eine einzige Stelle $L = L_0$, $v_{ik} = 0$ (das Minimum der potentiellen Energie) entwickelt wird, bei der also die Φ_{ik}^{mn} von L, v nicht abhängen, als „quasiharmonische Näherung“ bezeichnet. Sie ist sinnvoll, solange man nicht zu hohe Temperaturen betrachtet und nur die thermischen Kristalldaten berechnet. (Für die Berechnung der kalorischen Daten ist die Näherung nicht geeignet, vgl. [3], W. LUDWIG, sowie [2], S. 269–274, S. 287 ff.).

Statt des endlichen Kristalls betrachten wir in der üblichen Weise einen unendlichen Kristall mit einem Periodizitätsvolumen, das N Atome enthält. In (6) verschwinden dann die Φ_i^m : Φ enthält keine in den Auslenkungen linearen Glieder. [Man beweist dies leicht daraus, daß die Mittellagen $\mathbf{X}^m(L, v_{ik})$ ein regelmäßiges Gitter bilden, in dem jedes Atom Symmetriezentrum ist.]

Der Hamilton-Operator unseres Kristalls wird in quasiharmonischer Näherung

$$H = - \sum_{m,i} \frac{\hbar^2}{2M_m} \frac{\partial^2}{\partial x_i^{m2}} + \Phi^{(h)}(L, v, \mathbf{s}^m) \quad \left. \begin{aligned} &= \Phi^{(0)}(L, v) + \underbrace{\sum_{m,i} \frac{(p_i^m)^2}{2M_m} + \sum_{\substack{m,i \\ n,k}} \Phi_{ik}^{mn}(L, v) \cdot s_i^m \cdot s_k^n}_{H^{(s)}} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

(M_m = Masse des Atoms m).

Von den zwei Anteilen $\Phi^{(0)}$ und $H^{(s)}$, aus denen sich H zusammensetzt, ist $\Phi^{(0)} = \Phi(X_1^1, \dots, X_3^N)$ die — nur von L, v_{ik} als Parametern abhängige — potentielle Energie des Kristalls für den Fall, daß sich alle Atome in ihren vorgegebenen mittleren Lagen $\mathbf{X}^m(L, v_{ik})$ befinden.

$H^{(s)}$ ist die mit der Schwingung der Atome um diese Mittellagen verbundene Energie als (homogen quadratische) Funktion der Auslenkungen s_i^m und der Impulse $p_i^m = \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x_i^m}$. Es hängt über die „Kopplungsparameter“ $\Phi_{ik}^{mn}(X_1^1, \dots, X_3^N)$ von L und der Matrix v ab.

Durch eine geeignete Hauptachsentransformation („kanonische Transformation auf Normalkoordinaten“) geht $H^{(s)}$ in den Hamilton-Operator eines Systems von entkoppelten harmonischen Oszillatoren über: die Eigenwerte von $H^{(s)}$ haben die Form

$$E_{n_1, \dots, n_{3N}}(L, v_{ik}) = \sum_{J=1}^{3N} (n_J + \frac{1}{2}) \hbar \omega_J(L, v_{ik})$$

mit natürlichen Zahlen n_J .

Die übliche statistisch-mechanische Behandlung liefert für die freie Energie pro Elementarzelle ($N_z - N/2 =$ Zahl der Zellen im Kristall):

$$\left. \begin{aligned} F_z &= -\frac{1}{N_z} \cdot kT \ln Z = -\frac{1}{N_z} kT \ln \sum_{n_1, n_2, \dots} e^{-\frac{E(n_1, \dots, n_2, \dots)}{kT}} \\ &= \underbrace{\frac{\Phi^{(0)}(L, v)}{N_z}}_{\Phi_z} - \underbrace{\frac{1}{N_z} \sum_{j=1}^{3N} \left[\frac{\hbar \omega_j(L, v)}{2} - kT \ln \left(1 + e^{-\frac{\hbar \omega_j(L, v)}{kT}} \right) \right]}_{F_z^{(s)}} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$$\Phi_z = \frac{1}{N_z} \Phi^{(0)}(L, v) = \frac{1}{N_z} \Phi(X_1^1, \dots, X_3^N) \quad (9)$$

ist die potentielle Energie des Kristalls pro Zelle, wenn sich alle Ionen in ihren mittleren Lagen befinden. $N_z F_z^{(s)}$ ist die Summe der Schwingungsenergien der einzelnen Oszillatoren nach PLANCK. $F_z^{(s)}$ hängt über die Frequenzen ω_j von L und den v_{ik} ab.

Mit der Mittelwertdefinition

$$\overline{f(\omega)} = \frac{1}{3N} \sum_j f(\omega_j) \quad (10)$$

können wir F_z auch in der Form

$$F_z = \Phi_z(L, v_{ik}) + 6kT \ln \left(2 \sin \frac{\hbar \omega}{2kT} \right) \quad (11)$$

schreiben.

c) Das Einstein-Modell

Zur Berechnung von F_z ersetzen wir nun die $3N$ Oszillatoren der verschiedenen Frequenzen ω_j näherungsweise durch $3N$ Oszillatoren der *einen* Frequenz $\sqrt{\overline{\omega^2}}$ („Einstein-Modell“). Dadurch wird

$$F_z^{(s)} = 6kT \ln \left(2 \sin \frac{\hbar \sqrt{\overline{\omega^2}}}{2kT} \right) \quad (12)$$

und

$$F_z^{(s)} \approx 6kT \ln \frac{\hbar \sqrt{\overline{\omega^2}}}{kT} \quad \text{für hohe } (kT \gg \hbar \sqrt{\overline{\omega^2}}), \quad (13a)$$

$$F_z^{(s)} \approx 3\hbar \sqrt{\overline{\omega^2}} \quad \text{für tiefe Temperaturen} \quad (13b) \\ (kT \ll \hbar \sqrt{\overline{\omega^2}}).$$

Der Vorteil dieses Verfahrens liegt in folgendem: Die Transformation auf Normalkoordinaten ist im wesentlichen eine Transformation der symmetrischen, reellen Matrix

$$\Phi_{ik}^{mn} / \sqrt{M_m \cdot M_n} \quad (M_m = \text{Masse des Atoms } m)$$

auf die Hauptachsenform $\omega_J^2 \cdot \partial_{JK}$, $J, K = 1, \dots, 3N$. Bei dieser Transformation bleibt die Spur der Matrix invariant:

$$\sum_{J=1}^{3N} \omega_J^2 = 3N\bar{\omega}^2 = \sum_m \frac{\Phi_{i i}^m}{M_m} \quad (14)$$

Wir können also $\bar{\omega}^2$ ohne die Kenntnis der einzelnen Gitterfrequenzen oder ihrer Verteilungsfunktion, des „Gitterspektrums“, leicht erhalten.

Wir kennzeichnen von nun an das Atom (m) durch einen ganzzahligen Vektor \mathbf{m} , der die Lage der Elementarzelle angibt, zu welcher (m) gehört, sowie durch eine Nummer μ , $\mu = 1, 2$, welche die beiden Ionen der Zelle unterscheidet.

$$M_m = M_\mu^m \text{ und } \sum_i \Phi_{i i}^m = \sum_i \Phi_{i i}^{\mathbf{m} \mathbf{m}} = \sum_i \frac{\partial^2}{\partial x_{i \mu}^{\mathbf{m}^2}} \Phi = \Delta_\mu^{\mathbf{m}} \Phi$$

hängen von \mathbf{m} nicht ab, da ja in dem regelmäßigen Gitter $\mathbf{X}^m = \mathbf{X}_\mu^m$ keine Zelle vor den übrigen physikalisch ausgezeichnet ist.

Daher wird

$$\bar{\omega}^2(L, v_{ik}) = \frac{1}{6} \sum_{\mu=1}^2 \frac{1}{M_\mu} \cdot \Delta_\mu^o \Phi \Big|_{\mathbf{x}=\mathbf{X}(L, v_{ik})} \quad (15)$$

Eine Abschätzung der Güte der „Einstein-Term“-Näherung an Hand der Debyeschen Theorie (s. [2], S. 279 ff.) läßt gute numerische Gültigkeit für kleine und große T , weniger gute im Gebiet „mittlerer“ Temperaturen ($kT \approx \hbar \bar{\omega}^2$) erwarten. Für die thermischen Daten (d.h. für die Ableitungen der freien Energie nach den Verzerrungen) ist das Ersetzen des Spektrums durch einen Einstein-Term bei $T=0$ und bei hohen Temperaturen praktisch exakt (vgl. [3]!). — Das Einmündungsgesetz der freien Energie bei tiefen Temperaturen, das experimentell die Debyesche T^4 -Proportionalität zeigt, wird durch das Einstein-Modell nicht wiedergegeben. Dieses bedingt vielmehr ein exponentielles Einmünden von F_s bei $T=0$.

d) Zentralkräfte

Zur Weiterführung der Berechnung der freien Energie benötigen wir nun Annahmen über die zwischen den Gitterbausteinen wirkenden Kräfte. Diese wollen wir näherungsweise durch die Coulombschen Kräfte zwischen den Ionen als Punktladungen und durch ein nicht-Coulombsches Zentralpotential darstellen, das abstoßenden kurzreichweitigen Charakters ist und nur zwischen nächsten Nachbarn berücksichtigt wird.

Ebenso wie F_z zerfällt natürlich auch jeder der Entwicklungskoeffizienten der Gl. (1) in einen potentiellen und in einen Schwingungsanteil:

$$\left. \begin{aligned} F_1 &= \Phi_1 + F_1^{(s)} \\ F_{\mu\nu} &= \Phi_{\mu\nu} + F_{\mu\nu}^{(s)} \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

Wir geben zunächst Formeln für diese Größen für den Fall beliebiger Zentralkräfte an, die dann unter e) auf den oben angeführten Kraftansatz spezialisiert werden. Dabei kümmern wir uns nicht um das nullte Glied der Entwicklung, da dieses zur Berechnung der thermischen Daten nicht benötigt wird.

Wir bezeichnen hinfort die Ortsvariable des Ions (μ) der Zelle (\mathbf{m}) mit $\mathbf{x}_\mu^{\mathbf{m}}$. Die vorgegebene mittlere Lage desselben Ions heißt im verzerrten Gitter $\mathbf{X}_\mu^{\mathbf{m}}(L, v_{i\bar{k}})$, im unverzerrt kubischen Gitterzustand $\xi_\mu^{\mathbf{m}}(L)$. Die entsprechenden Beträge seien $r_\mu^{\mathbf{m}}$, $R_\mu^{\mathbf{m}}$ und $\varrho_\mu^{\mathbf{m}}$. Die Differenzen $\mathbf{x}_\mu^{\mathbf{m}} - \mathbf{x}_\nu^{\mathbf{n}}$ bezeichnen wir kurz mit $\mathbf{x}_{\mu\nu}^{\mathbf{m}\mathbf{n}}$ usw.

Ist $\varphi_{\mu\nu}(r) = \varphi_{\nu\mu}(r)$, $\mu = 1, 2$; $\nu = 1, 2$ das Zentralpotential zwischen zwei Gitteratomen, die innerhalb ihrer Zelle die Nummern μ und ν haben, als Funktion des Abstandes r dieser beiden Atome voneinander, so wird die potentielle Gitterenergie

$$\Phi(\mathbf{x}^1, \dots, \mathbf{x}^N) = \frac{1}{2} \sum_{\left(\mathbf{n}\right)_{\text{in } V}} \sum_{\left(\mathbf{m}\right) \neq \left(\mathbf{n}\right)} \varphi_{\mu\nu}(r_{\mu\nu}^{\mathbf{m}\mathbf{n}}). \quad (17)$$

Dabei ist die erste Summe zu erstrecken über alle Atome im Periodizitätskasten, die zweite über alle Atome des unendlichen Kristalls mit Ausnahme des herausgegriffenen Atoms $\left(\mathbf{n}\right)$.

α) Der potentielle Anteil der freien Energie pro Zelle wird*

$$\Phi_z(L, v_{i\bar{k}}) = \frac{1}{N_z} \Phi(\mathbf{X}^1, \dots, \mathbf{X}^N) = \frac{1}{2} \sum_{\nu=1}^2 \sum_{\left(\mathbf{m}\right) \neq \left(\mathbf{o}\right)} \varphi_{\mu\nu}(R_{\mu\nu}^{\mathbf{m}\mathbf{o}}), \quad (18)$$

wobei die zweite Summation wieder über alle Atome des „ $\left(\mathbf{o}\right)_\nu$ “ umgebenden unendlichen Gitters, die erste dagegen jetzt nur noch über die zwei Atome einer herausgegriffenen Elementarzelle (hier o. B. d. A. derjenigen mit $\mathbf{m} = \mathbf{o}$) läuft.

Den Ausdruck (18) kann man ohne große Schwierigkeiten nach den Verzerrungsvariablen $v_{i\bar{k}}$ entwickeln. Bei Berücksichtigung der kubischen Symmetrie des Ausgangszustands mit $v_{i\bar{k}} = 0$ erhält man schließlich als Koeffizienten dieser Entwicklung und potentielle Anteile der

* Die $\mathbf{X}_\mu^{\mathbf{m}}(L, v_{i\bar{k}})$ bilden ja ein regelmäßiges Gitter, in welchem alle Zellen \mathbf{m} gleichberechtigt sind.

Entwicklungskoeffizienten der freien Energie

$$\left. \begin{aligned} \Phi_1(L) &= \frac{1}{2} \sum_{\nu=1}^2 \sum_{\left(\begin{smallmatrix} \mathbf{m} \\ \mu \end{smallmatrix}\right) \neq \left(\begin{smallmatrix} \mathbf{o} \\ \nu \end{smallmatrix}\right)} \left[O q_{\mu\nu}(\varrho) \cdot \frac{\varrho^2}{3} \right], \\ \Phi_{11}(L) &= \frac{1}{2} \sum_{\nu=1}^2 \sum_{\left(\begin{smallmatrix} \mathbf{m} \\ \mu \end{smallmatrix}\right) \neq \left(\begin{smallmatrix} \mathbf{o} \\ \nu \end{smallmatrix}\right)} [O^2 \varphi_{\mu\nu}(\varrho) \cdot \xi_1^4], \\ \Phi_{44}(L) = \Phi_{12}(L) &= \frac{1}{2} \sum_{\nu=1}^2 \sum_{\left(\begin{smallmatrix} \mathbf{m} \\ \mu \end{smallmatrix}\right) \neq \left(\begin{smallmatrix} \mathbf{o} \\ \nu \end{smallmatrix}\right)} [O^2 \varphi_{\mu\nu}(\varrho) \cdot \xi_1^2 \xi_2^2] \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

mit

$$O = \frac{1}{r} \frac{d}{dr}, \quad O \varphi(\varrho) = \frac{1}{r} \frac{d\varphi}{dr} \Big|_{r=\varrho} \quad \text{usw.}$$

Innerhalb der eckigen Klammern sind an den Ortskoordinaten ϱ, ξ der Einfachheit halber die Indizes $\left(\begin{smallmatrix} \mathbf{m} \mathbf{o} \\ \mu \nu \end{smallmatrix}\right)$ fortgelassen.

Wenn man vom Vorhandensein des Schwingungsanteils $F_z^{(s)}$ der freien Energie ganz absieht, lautet die (jetzt rein statisch-mechanische) Gleichgewichtsbedingung [s. Gln. (1) und (3)!]

$$\frac{\partial \Phi_g}{\partial L} \Big|_{v_{lk}=0} = 0 \quad (20)$$

(Die potentielle Energie hat ein Minimum) oder

$$\Phi_1(L) = 0.$$

Der aus (20) ermittelte Abstand nächster Nachbarn im statischen Gleichgewicht wird im folgenden L_0 genannt.

Die nach Berücksichtigung der Gleichgewichtsbedingung (20) allein aus der potentiellen Gitterenergie ermittelten „statischen“ elastischen Konstanten [vgl. (4)]

$$c_{11}^{(0)} = \frac{\Phi_{11}(L_0)}{V_{z0}}, \quad c_{12}^{(0)} = \frac{\Phi_{12}(L_0)}{V_{z0}}, \quad c_{44}^{(0)} = \frac{\Phi_{44}(L_0)}{V_{z0}} \quad (21)$$

erfüllen infolge der Annahme reiner Zentralkraftwechselwirkung die „Cauchy-Relation“ für kubische Kristalle:

$$c_{12}^{(0)} = c_{44}^{(0)}. \quad (22)$$

β) Die Schwingungsenergie ist nach (12) durch $\overline{\omega^2}$ bestimmt. Wir wollen hier nur die beiden Gl. (13) benutzen, da die Einstein-Termin-Näherung im Gebiet „mittlerer“ Temperaturen ungenau ist (s. Abschnitt 2c) und die Entwicklung von Gl. (12) nach den Verzerrungsvariablen recht kompliziert wird.

Nach (15) ist (wenn wir im folgenden $\sqrt{\omega^2(L, v_{ik})}$ einfach mit $\omega(L, v_{ik})$, $\sqrt{\omega^2(L, 0)}$ mit $\omega(L)$ bezeichnen)

$$\omega^2(L, v_{ik}) = \frac{1}{6} \left(\frac{\Delta_1^o \Phi}{M_1} + \frac{\Delta_2^o \Phi}{M_2} \right) \mathbf{x}_\mu^m = \mathbf{x}_\mu^o.$$

Das Potential Φ kann sich nach (17) bei Änderung von \mathbf{x}_v^o nur dadurch ändern, daß sich das Potential zwischen dem Ion $\binom{o}{v}$ und allen übrigen Ionen ändert:

$$\left. \begin{aligned} \omega^2 &= \frac{1}{6} \sum_{r=1,2} \left\{ \frac{\Delta_r^o}{M_r} \sum_{\binom{m}{\mu} = \binom{o}{r}} \varphi_{\mu r}(|\mathbf{x}_\mu^m - \mathbf{x}_r^o|) \right\}_{\mathbf{x}_1^o = \mathbf{x}_1^o} \\ &= \frac{1}{6} \sum_{v=1,2} \frac{1}{M_v} \sum_{\binom{m}{\mu} \neq \binom{o}{v}} \left\{ \Delta_\mu^m \varphi_{\mu v}(|\mathbf{x}_\mu^m - \mathbf{x}_v^o|) \right\}_{\mathbf{x}_\mu^m = \mathbf{x}_\mu^m} \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

Mit der Abkürzung

$$\Delta \varphi_{\mu v}(r) = \left(\frac{d^2}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d}{dr} \right) \varphi_{\mu v}(r) = G_{\mu v}(r)$$

wird analog zu (18)

$$\omega^2(L, v_{ik}) = \frac{1}{6} \left\{ \sum_{\binom{m}{\mu} \neq \binom{o}{1}} \frac{G_{\mu 1}(R_\mu^m \mathbf{1})}{M_1} + \sum_{\binom{m}{\mu} \neq \binom{o}{2}} \frac{G_{\mu 2}(R_\mu^m \mathbf{2})}{M_2} \right\}. \quad (24)$$

Für die Koeffizienten $\Omega_1, \Omega_{11}, \Omega_{12}, \Omega_{44}$ der Entwicklung von (24) nach den Verzerrungsvariablen ergeben sich Formeln, die denen der Gln. (19) völlig analog sind, z. B.

$$\Omega_{12} = \Omega_{44} = \frac{1}{6} \left\{ \sum_{v=1}^2 \sum_{\binom{m}{\mu} \neq \binom{o}{1}} \left[\frac{1}{M_v} \cdot O^2 G_{\mu v}(\varrho) \cdot \xi_1^2 \cdot \xi_2^2 \right] \right\}. \quad (25)$$

In die Entwicklungskoeffizienten des Schwingungsanteils $F_z^{(s)}$ der freien Energie (13) gehen die auf $\bar{\omega}^2$ im unverzerrten Zustand $(L, 0, T)$ bezogenen Größen

$$S_1(L) = \frac{\Omega_1(L)}{\omega^2(L)}, \quad S_{11}(L) = \frac{\Omega_{11}(L)}{\omega^2(L)} \quad \text{usw.}$$

ein.

Die Entwicklungskoeffizienten der gesamten freien Energie werden schließlich

$$\left. \begin{aligned} F_1 &= \Phi_1(L) + F_1^{(s)}(L, T) = \Phi_1 + 3\varepsilon(T) \cdot S_1(L) \\ F_{11} &= \Phi_{11}(L) + F_{11}^{(s)}(L, T) = \Phi_{11} + 3\varepsilon(T) \cdot S_{11}(L) - \chi(T) \cdot 3\varepsilon(T) \cdot S_1^2(L) \\ F_{12} &= \Phi_{12}(L) + F_{12}^{(s)}(L, T) = \Phi_{12} + 3\varepsilon(T) \cdot S_{11}(L) - \chi(T) \cdot 3\varepsilon(T) \cdot S_1^2(L) \\ F_{44} &= \Phi_{44}(L) + F_{44}^{(s)}(L, T) = \Phi_{44} + 3\varepsilon(T) \cdot S_{44}(L). \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

Darin ist abkürzend

$$\varepsilon(T) = \begin{cases} \frac{\hbar\omega(L)}{2} & \text{bei tiefen Temperaturen } (kT \ll \hbar\omega) \\ kT & \text{bei „hohen“ Temperaturen } (kT \gg \hbar\omega) \end{cases} \quad (26a)$$

sowie

$$\chi(T) = \begin{cases} \frac{1}{2}, & kT \ll \hbar\omega \\ 1, & kT \gg \hbar\omega \end{cases} \quad (26b)$$

gesetzt.

In (26) ist infolge der Annahme reiner Zentralkraftwechselwirkung zwischen den Gitterbausteinen

$$\Phi_{12} = \Phi_{44} \quad \text{und} \quad S_{12} = S_{44} \quad [\text{vgl. (19), (25)}].$$

Die isothermen elastischen Konstanten [vgl. (4)]

$$c_{\mu\nu}(T) = \frac{1}{V_z(L_g(T))} F_{\mu\nu}(L_g(T), T)$$

erfüllen jedoch nach (26) im Gegensatz zu den „statischen“ Konstanten $\Phi_{\mu\nu}|_{T=0}$ der Gln. (21) die Cauchy-Relation $c_{12} = c_{44}$ nicht, auch nicht bei $T=0$.

*e) Spezielle Zentralkräfte: Coulomb-Kräfte
und Zentralkraft-Abstoßung nächster Nachbarn*

Für den *Coulomb-Anteil* des Potentials wird in (17)

$$\overset{C}{\varphi}_{11}(r) = \overset{C}{\varphi}_{22}(r) = + \frac{e^2}{r}; \quad \overset{C}{\varphi}_{12}(r) = \overset{C}{\varphi}_{21}(r) = - \frac{e^2}{r}. \quad (27a)$$

Vom *Rest* wird, wie unter d) vereinbart, nur das Potential

$$\varphi_{12}(r) = \varphi_{21}(r) = \varphi(r) \quad (27b)$$

zwischen nächsten (ungleichen) Nachbarn berücksichtigt.

α) Für den *potentiellen Anteil* der freien Energie hat (27) zur Folge, daß die beiden Teilsummen in (18) gleich werden^{*}:

$$\Phi_z(L, v_{ik}) = \underbrace{\sum_{\substack{(\mu) \neq (1) \\ \text{C}}} \overset{C}{\varphi}_{\mu 1}(R_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}})}_{\Phi_z} + \underbrace{\sum_{\substack{\varrho_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} = L \\ \text{NC}}} \varphi(R_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}})}_{\Phi_z^{\text{NC}}} = \overset{C}{\Phi}_z + \overset{\text{NC}}{\Phi}_z. \quad (28)$$

(Die zweite Summe läuft infolge der Bedingung $\varrho_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} = L$ nur über nächste Nachbarn.)

^{*} Die Konfiguration, die ein positives Ion sieht, ist mit der von einem negativen Ion aus gesehenen Struktur bis auf Vertauschung der Ionensorten identisch.

Daraus, daß die $\xi_{\mu}^{\mathbf{m}}$ zu L proportional sind, und aus (18), (19) sieht man, daß die Coulomb-Anteile $\overset{\text{C}}{\Phi}_z, \overset{\text{C}}{\Phi}_1$ usw. infolge von (27a) alle die Form

$$(\text{Zahl}) \cdot \frac{e^2}{L} \quad (29)$$

haben müssen. Mit der „Madelungschen Zahl“ Z_1 ist

$$\overset{\text{C}}{\Phi}_z(L, 0) = \sum_{\left(\begin{smallmatrix} \mathbf{m} \\ \mu \end{smallmatrix}\right) \neq \left(\begin{smallmatrix} \mathbf{o} \\ 1 \end{smallmatrix}\right)} \overset{\text{C}}{\varphi}_{\mu 1}(\varrho_{\mu}^{\mathbf{m} \mathbf{o}}) = -Z_1 \frac{e^2}{L}. \quad (30)$$

Nach Fußnote * auf S. 499 wird daher

$$\overset{\text{C}}{\Phi}_1 = \frac{L}{3} \cdot \frac{\partial \overset{\text{C}}{\Phi}_z}{\partial L} = \frac{Z_1}{3} \cdot \frac{e^2}{L}. \quad (31)$$

In

$$\overset{\text{C}}{\Phi}_1 + \overset{\text{C}}{\Phi}_{11} + 2\overset{\text{C}}{\Phi}_{12} = \frac{L^2}{3} \cdot \frac{\partial^2 \overset{\text{C}}{\Phi}_z}{\partial L^2} = -\frac{2Z_1}{3} \cdot \frac{e^2}{L} \quad (32)$$

(vgl. Fußnote * auf S. 499) hat man jetzt bei bekanntem Z_1 eine erste Gleichung zur Bestimmung von $\overset{\text{C}}{\Phi}_{11}$ und $\overset{\text{C}}{\Phi}_{12}$.

Eine zweite Gleichung erhält man z. B. durch numerische Berechnung des Schubmoduls

$$\overset{\text{C}}{G}_1 = \frac{1}{V_z} \cdot \frac{\partial^2 \overset{\text{C}}{\Phi}_z}{\partial v_{13}^2} = \frac{1}{V_z} \left(\overset{\text{C}}{\Phi}_1 + \overset{\text{C}}{\Phi}_{12} \right) \quad (33)$$

nach der Madelungschen Methode.

Das Ergebnis der Elimination von $\overset{\text{C}}{\Phi}_{11}$ und $\overset{\text{C}}{\Phi}_{12}$ aus (32) und (33) kann nach (29) beschrieben werden durch

$$\overset{\text{C}}{\Phi}_{11} = \beta_c \frac{e^2}{L}, \quad \overset{\text{C}}{\Phi}_{44} = \overset{\text{C}}{\Phi}_{12} = \gamma_c \frac{e^2}{L}, \quad (34)$$

wo β_c, γ_c vom Gittertyp abhängige, reine Zahlen sind (spezielle Werte für NaCl und CsCl s. Tabelle 1).

Die Nicht-Coulombschen Anteile bekommen mit den durch

$$\text{und} \quad \left. \begin{aligned} \sum_{\varrho_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} = L} \left(\xi_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} \right)^4 &= \beta \cdot L^4 \\ \sum_{\varrho_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} = L} \left(\xi_{\mu 1}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} \right)^2 \cdot \left(\xi_{\mu 2}^{\mathbf{m} \mathbf{o}} \right)^2 &= \gamma \cdot L^4 \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

definierten, vom Gittertyp abhängigen Zahlen β und γ (Werte s. Tabelle 1) sowie der „Koordinationszahl“ (Zahl nächster Nachbarn) Z nach (18), (19) die Form

$$\left. \begin{aligned} \overset{\text{NC}}{\Phi}_z(L, 0) &= Z \cdot \varphi(L) \\ \overset{\text{NC}}{\Phi}_1(L, 0) &= \frac{Z}{3} \cdot L \cdot \varphi'(L) \\ \overset{\text{NC}}{\Phi}_{11}(L, 0) &= \beta \cdot L^4 \cdot O^2 \varphi(L) \\ \overset{\text{NC}}{\Phi}_{44}(L, 0) &= \overset{\text{NC}}{\Phi}_{12}(L, 0) = \gamma \cdot L^4 \cdot O^2 \varphi(L) \end{aligned} \right\} \quad (36)$$

β) In die Schwingungsenergie gehen die Coulomb-Kräfte in unserer Einstein-Term-Näherung überhaupt nicht ein. Die Coulomb-Anteile der in dem Ausdruck für $\overline{\omega^2}$ vorkommenden Größen $\Delta_v^o \Phi|_{\mathbf{x}=\mathbf{x}}$ sind nämlich bis auf einen Faktor e gleich dem Δ -Operator, angewandt an der Stelle $\mathbf{x} = \mathbf{X}_1^o$ auf das elektrostatische Potential ψ derjenigen Ladungsverteilung $\varrho_{\text{el.}}(\mathbf{x})$, die von allen Gitterionen mit Ausnahme des bei $\mathbf{x} = \mathbf{X}_1^o$ befindlichen Ions $\left(\begin{smallmatrix} o \\ 1 \end{smallmatrix}\right)$ gebildet wird [vgl. auch Gl. (23)]. Nach der Poisson-Gleichung der Elektrostatik ist aber

$$\Delta \psi|_{\mathbf{x}=\mathbf{X}_1^o} = -4\pi \varrho_{\text{el.}}|_{\mathbf{x}=\mathbf{X}_1^o} = 0.$$

Die elektrostatischen Kräfte zwischen den Ionen geben also zu $\overline{\omega^2}$ keinen Beitrag.

Nach (24), (25) wird dann mit $\frac{1}{M} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}$ und denselben Zahlen γ, β, Z wie in (36) sowie mit $G(L) = \Delta \varphi(r)|_{r=L}$, $OG(L) = \frac{1}{r} \frac{dG}{dr}|_{r=L}$ usw.

$$\overline{\omega^2(L, 0)} = \omega^2(L) = \frac{Z}{6M} \cdot G(L) \quad (37)$$

und z.B.

$$\Omega_{44}(L) = \Omega_{12}(L) = \frac{\gamma}{6M} \cdot L^4 \cdot O^2 G(L),$$

so daß

$$\left. \begin{aligned} \frac{\Omega_1(L)}{\omega^2(L)} &= S_1(L) = \frac{L^3}{3} \cdot \frac{OG(L)}{G(L)}, \\ S_{11}(L) &= \frac{\beta}{Z} \cdot L^4 \cdot \frac{O^2 G(L)}{G(L)}, \\ S_{44}(L) &= S_{12}(L) = \frac{\gamma}{Z} \cdot L^4 \cdot \frac{O^2 G(L)}{G(L)} \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

wird.

Nach (26) erhalten wir schließlich für die Koeffizienten der Entwicklung der gesamten freien Energie nach den Verzerrungen aus dem

beliebig gewählten Ausgangszustand (L, O, T) :

	Anteil des Coulomb- Nicht-Coulomb- Potentials	Schwingungsanteil	
$F_1(L, T) =$	$\frac{Z_1}{3} \frac{e^2}{L} + \frac{Z}{3} L \varphi'(L)$	$+\varepsilon(T) \cdot L^2 \frac{OG(L)}{G(L)}$	(39a)
$F_{11}(L, T) =$	$\beta_c \frac{e^2}{L} + \beta L^4 O^2 \varphi(L)$	$+\varepsilon(T) \cdot \frac{3\beta}{Z} L^4 \frac{O^2 G(L)}{G(L)} - \varepsilon(T) \chi(T) \cdot \frac{L^4}{3} \left(\frac{OG(L)}{G(L)} \right)^2$	(39b)
$F_{12}(L, T) =$	$\gamma_c \frac{e^2}{L} + \gamma L^4 O^2 \varphi(L)$	$+\varepsilon(T) \cdot \frac{3\gamma}{Z} L^4 \frac{O^2 G(L)}{G(L)} - \varepsilon(T) \chi(T) \cdot \frac{L^4}{3} \left(\frac{OG(L)}{G(L)} \right)^2$	(39c)
$F_{44}(L, T) =$	$\gamma_c \frac{e^2}{L} + \gamma L^4 O^2 \varphi(L)$	$+\varepsilon(T) \cdot \frac{3\gamma}{Z} L^4 \frac{O^2 G(L)}{G(L)} \left(\begin{array}{c} \uparrow \\ \text{Abweichung von der} \\ \text{Cauchy-Relation } c_{12} = c_{44} \end{array} \right)$	(39d)

3. Die Linearisierung in kT ; Gleichgewichtsbedingung und elastische Konstanten

a) Die Entwicklung nach $\varepsilon(T)$

Zur Ermittlung des thermischen Gleichgewichtsabstandes L_g nächster Nachbarn als Funktion der Temperatur haben wir nach (3) in (39) $F_1(L, T) = 0$ zu setzen.

Einsetzen von $L_g(T)$ in die zweiten Ableitungen $F_{\mu\nu}(L, T)$ der freien Energie nach den Verzerrungen [vgl. (4)] und Division durch das Volumen der Elementarzelle führt auf die isothermen elastischen Konstanten

$$c_{\mu\nu}(T) = \frac{F_{\mu\nu}(L_g(T), T)}{V_z(L_g(T))}$$

(Mit $V_z(L) = \sigma \cdot L^3$, $\sigma = 2$ für NaCl, $\sigma = \frac{8}{9}\sqrt{3}$ für CsCl).

Wir wollen $L_g(T)$ und die $c_{\mu\nu}(T)$ nach Potenzen von

$$\varepsilon(T) = \left\{ \begin{array}{ll} \frac{\hbar\omega(L)}{2} & \text{bei tiefen,} \\ kT & \text{bei hohen Temperaturen} \end{array} \right\}$$

(d.h. im wesentlichen nach Potenzen der mittleren Schwingungsenergie pro Freiheitsgrad) entwickeln. Es sei

$$\begin{array}{l} \text{a) } L_g(T) = L_0 + L_1 + L_2 + \dots \\ \text{b) } c_{\mu\nu}(T) = c_{\mu\nu}^{(0)} + c_{\mu\nu}^{(1)} + c_{\mu\nu}^{(2)} + \dots \end{array} \quad (40)$$

mit $L_1 = l_1 \cdot \varepsilon(T)$, l_1 temperaturunabhängig;

$L_2 = \text{const} \cdot \varepsilon^2$ usw.

L_0 , L_1 usw. werden durch Entwickeln beider Seiten der ersten Gl. (26) bzw. (39) nach Potenzen von $\varepsilon(T)$ und Koeffizientenvergleich ermittelt. Einsetzen von (40a) in die drei letzten Gln. (26) bzw. (39) ergibt dann die Entwicklung (40b).

Die Gleichungen nullter Ordnung ergeben [vgl. (26)] natürlich die statischen, allein aus der potentiellen Energie ermittelten Werte $L = L_0$ (Minimum der potentiellen Energie) und $c_{\mu\nu} = c_{\mu\nu}^{(0)}$ [vgl. (3), (4)]. Sie lauten

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \Phi_z}{\partial L} \Big|_{L=L_0} &= 0 \quad \text{oder, nach (39): } Z_1 \frac{e^2}{L_0^3} + Z \varphi'(L_0) = 0; \\ c_{\mu\nu}^{(0)} &= \frac{\Phi_{\mu\nu}(L_0)}{V_z(L_0)} = \frac{\Phi_{\mu\nu}(L_0)}{\sigma L_0^3}. \end{aligned} \right\} \quad (41)$$

Die Gleichung erster Ordnung zur Bestimmung von $L_1(T)$ führt mit (39), (41) und den Abkürzungen $G(L_0) = G_0$, $OG(L_0) = OG_0$ usw. auf

$$\frac{L_1(T)}{L_0} = -\varepsilon(T) \cdot \frac{3}{Z} \cdot \frac{OG_0}{G_0^2}. \quad (42)$$

Die entsprechende Gleichung zweiter Ordnung in ε führt auf

$$\frac{L_2(T)}{L_1(T)} = -\varepsilon(T) \cdot \frac{3}{Z} \left\{ 2 \frac{OG_0}{G_0^2} + L_0^2 \frac{O^2 G_0}{G_0^3} - \frac{3}{2} L_0^2 \frac{(OG_0)^2}{G_0^3} \right\}. \quad (43)$$

Eine Abschätzung von L_1/L_0 und L_2/L_1 an Hand des Born-Mayerschen Ansatzes $\varphi(r) = C \exp(-r/b)^*$ ergibt für NaCl, KCl, KBr bei „hohen“ Temperaturen

$$\left. \begin{aligned} \frac{L_1}{L_0} &\approx \frac{T}{3 \cdot 10^4 \text{ }^\circ\text{K}} \quad (\approx 2\% \text{ bei } 500^\circ\text{K}) \\ \frac{L_2}{L_1} &\approx \frac{T}{10^4 \text{ }^\circ\text{K}} \quad \left(\approx 10\% \text{ bei } 500^\circ\text{K, d.h. } \frac{L_2}{L_0} \approx 0,2\% \right). \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

Das zweite Glied L_2 der Entwicklung von $L_g(T)$ nach Potenzen von kT bewirkt also bei nicht allzu hohen Temperaturen nur eine sehr kleine Korrektur an $L_g = L_0 + L_1$. Wir berücksichtigen daher in $L_g(T)$ nur L_0 und das in $\varepsilon(T)$ lineare Glied L_1^{**} . Die in (44) gegebene Größenordnung von L_1 stimmt mit derjenigen des experimentellen $L_g - L_0$ überein (s. Tabelle 4).

* Bei dieser Abschätzung wurden die Konstanten C und b so bestimmt, daß die Gleichungen $\frac{\partial \Phi_z}{\partial L} \Big|_{L=L_0} = Z_1 \frac{e^2}{L_0^3} + Z \varphi'(L_0) = 0$ für den „statischen“ Gleichgewichtsabstand L_0 nächster Nachbarn und $\frac{1}{\kappa_0} = V_z(L_0) \cdot \frac{\partial^2 \Phi_z}{\partial V_z^2} \Big|_{V_z=L_0} = \frac{c_{11}^{(0)} + 2c_{12}^{(0)}}{3} = L_0^2 \frac{Z G_0}{9 V_z(L_0)}$ für die „statische“ Kompressibilität κ_0 auf Werte führen, welche die Größenordnung des experimentellen $L_g(T)$ ($\approx 3 \text{ \AA}$) und der experimentellen Kompressibilität ($1/\kappa \approx 2 \cdot 10^{11} \text{ erg cm}^{-3}$) haben.

** Wollte man übrigens etwa noch L_2 berücksichtigen, so müßte man konsequenterweise zu $F_z = \Phi_z + F_z^{(s)}$ noch einen Term F_{anh} hinzufügen, der Abweichungen von der quasiharmonischen Näherung enthält und zu Korrekturen an $L_g(T)$ Anlaß gibt, welche die gleiche Größenordnung haben wie L_2 (vgl. W. LUDWIG [3]).

Wegen der Kleinheit von $(L_g - L_0)/L_0 = L_1/L_0$ setzen wir überdies bei tiefen Temperaturen näherungsweise

$$\varepsilon(T) = \frac{\hbar \omega(L_g(T))}{2} \approx \frac{\hbar \omega_0}{2} = \frac{\hbar \omega(L_0)}{2} = \frac{\hbar}{2} \sqrt{\frac{Z}{6M}} G_0 \quad (45)$$

[vgl. (39)].

Eine ähnliche Abschätzung wie die für L_1/L_0 und L_2/L_1 gegebene ergibt für $c_{\mu\nu}^{(1)}/c_{\mu\nu}^{(0)}$ sowie für $c_{\mu\nu}^{(2)}/c_{\mu\nu}^{(1)}$ die Größenordnung 10% (für NaCl, KCl, KBr bei etwa 500° K). Wir wollen daher auch bei der Berechnung der $c_{\mu\nu}(T)$ die Glieder quadratischer und höherer Ordnung in ε vernachlässigen. Wie oben ersetzen wir bei tiefen Temperaturen $\varepsilon = \hbar \omega(L_g)/2$ durch $\hbar \omega(L_0)/2$.

Das Ergebnis der Linearisierung aller unserer Gleichungen in $\varepsilon(T)$ können wir kurz folgendermaßen zusammenfassen:

1. Es ist

$$L_g(T) = L_0 + L_1 \quad (46)$$

mit

$$L_1 = l_1 \cdot \varepsilon(T), \quad \varepsilon(T) = \begin{cases} \frac{\hbar}{2} \omega(L_0), & T \text{ klein} \\ \hbar T, & T \text{ „groß“} \end{cases}$$

L_0, l_1 sind von T unabhängig und folgen aus

$$F_1(L_g(T), T) = \underbrace{\Phi_1(L_0)}_{L_0 + \frac{\partial \Phi_z}{\partial L} \Big|_{L=L_0}} + \varepsilon(T) \cdot \left\{ l_1 \cdot \frac{d\Phi_1(L)}{dL} \Big|_{L=L_0} + 3 S_1(L_0) \right\} \equiv 0. \quad (47)$$

„ $L=L_0$ “ ist die „statische“ Gleichgewichtslage (Minimum der potentiellen Energie: $\frac{\partial \Phi_z}{\partial L} = 0$).

2. Die elastischen Konstanten werden

$$\left. \begin{aligned} c_{44}(T) &= \underbrace{\frac{\Phi_{44}(L_0)}{V_{z0}}}_{c_{44}^{(0)}} + \varepsilon(T) \left\{ l_1 \frac{d \frac{\Phi_{44}}{V_z}}{dL} \Big|_{L=L_0} + 3 \frac{S_{44}(L_0)}{V_{z0}} \right\} \\ c_{12}(T) &= \underbrace{\frac{\Phi_{12}(L_0)}{V_{z0}}}_{c_{12}^{(0)}} + \varepsilon(T) \left\{ l_1 \frac{d \frac{\Phi_{12}}{V_z}}{dL} \Big|_{L=L_0} + 3 \frac{S_{12}(L_0)}{V_{z0}} - 3 \chi(T) \cdot \frac{S_1^2(L_0)}{V_{z0}} \right\} \\ c_{11}(T) &= \underbrace{\frac{\Phi_{11}(L_0)}{V_{z0}}}_{c_{11}^{(0)}} + \varepsilon(T) \cdot \left\{ l_1 \frac{d \frac{\Phi_{11}}{V_z}}{dL} \Big|_{L=L_0} + 3 \frac{S_{11}(L_0)}{V_{z0}} - 3 \chi(T) \cdot \frac{S_1^2(L_0)}{V_{z0}} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (48)$$

[$\varepsilon(T)$ s. oben, $\chi(T)$ s. Gln. (39)].

Jede von ihnen besteht aus drei Anteilen:

a) Aus einem temperaturunabhängigen „statischen“ Anteil $c_{\mu\nu}^{(0)}$, der für Verzerrungen aus der „statischen“ Gleichgewichtslage bei alleiniger Berücksichtigung der potentiellen Energie gelten würde,

b) aus der Änderung $\varepsilon(T) \cdot l_1 \cdot \frac{d}{dL} \left. \frac{\Phi_{\mu\nu}}{V_z} \right|_{L=L_0}$ des potentiellen Anteils $\Phi_{\mu\nu}(L) V_z$ infolge der Abweichung $L_1 = \varepsilon(T) \cdot l_1$ des wirklichen, thermischen Gleichgewichtsabstandes vom statischen Abstand,

c) aus dem Anteil der Schwingungsenergie.

Aus 1., 2. ersieht man:

a) Abstand nächster Nachbarn und elastische Konstanten werden bei kleinen Temperaturen ($\varepsilon = \frac{\hbar \omega_0}{2}$) temperaturunabhängig*, während sie bei „hohen“ Temperaturen ($\varepsilon = kT$) linear mit der Temperatur verlaufen (Der thermische Ausdehnungskoeffizient $\alpha = \frac{1}{L_0} \frac{\partial L_g}{\partial T}$ wird also bei „hohen“ Temperaturen temperaturunabhängig, bei tiefen Temperaturen strebt er gegen Null).

b) Extrapoliert man den linearen Verlauf, den die Kurven $L_g(T)$, $c_{\mu\nu}(T)$ bei „hohen“ Temperaturen zeigen, bis auf $T=0$, so erhält man die „statischen“ Werte L_0 , $c_{\mu\nu}^{(0)}$.

NB.: 1. und 2. gelten auch, wenn nicht nur Zentralkräfte wirken, sofern nur die Linearisierung in $\varepsilon(T)$ berechtigt ist. Bei reiner Zentralkraftwechselwirkung ist natürlich (s. oben) $\Phi_{12} = \Phi_{44}$ („Cauchy-Relation“) und $S_{12} = S_{44}$, so daß zusätzlich zu a), b) noch gilt:

c) Es ist stets $c_{12} < c_{44}$.

d) Ermittelt man aus den experimentellen Kurven $c_{12}(T)$, $c_{44}(T)$ durch lineare Extrapolation auf $T=0$ die „statischen“ Konstanten $c_{12}^{(0)}$ und $c_{44}^{(0)}$, so kann man aus Abweichungen von der „Cauchy-Relation“

$$c_{12}^{(0)} = c_{44}^{(0)}$$

auf das Vorhandensein von nichtzentralen Kräften schließen.

b) Die Berechnung der elastischen Konstanten

nach der Anpassungsmethode und mit Hilfe des Born-Mayer-Potentials

Für unser spezielles Modell (elektrostatische Kräfte, Restzentralkräfte nur zwischen nächsten Nachbarn) sind die in (37) bis (39) enthaltenen Ausdrücke für Φ_1 , $\Phi_{\mu\nu}$, $\omega(L)$, S_1 usw. in (47), (48) einzusetzen. Wir wollen dies nicht explizit durchführen, sondern lediglich darauf

* Nach Gl. (12) strebt $F_z(T)$ bei tiefen Temperaturen ($T \rightarrow 0$) exponentiell und mit horizontaler Tangente seinem Wert für $T=0$ zu.

hinweisen, daß dabei von dem nicht Coulombschen Zentralpotential $\varphi(r)$ zwischen nächsten Nachbarn nur die ersten vier Ableitungen an der Stelle $r=L_0$ auftreten:

Φ_1 enthält $\varphi'(L_0)$, $\frac{d}{dL} \frac{\Phi_1}{V_z}$ enthält noch $\varphi''(L_0)$, $S_1(L_0)$ enthält zusätzlich noch $\varphi'''(L_0)$. Die $\Phi_{\mu\nu}(L_0)$ enthalten höchstens $\varphi''(L_0)$, die $\frac{d}{dL} \left(\frac{\Phi_{\mu\nu}}{V_z} \right)$ höchstens $\varphi'''(L_0)$ und die $S_{\mu\nu}(L_0)$ höchstens $\varphi^{IV}(L_0)$.

Die Werte dieser vier Ableitungen können wir uns zum Zwecke der zahlenmäßigen Berechnung der elastischen Konstanten und ihrer Temperaturkoeffizienten auf zweierlei Art verschaffen:

1. Durch Anpassung an experimentell direkt zugängliche Größen (dazu ist *kein* spezieller Ansatz über die Form des Potentials $\varphi(r)$ nötig!)

2. Mit Hilfe eines Näherungsausdruckes für das nicht Coulombsche Potential φ . Als solcher wird hier das exponentielle Born-Mayersche Überlapp-Potential benutzt.

α) Die *Anpassungsmethode* hat neben der Vermeidung ungenauer Potentialansätze noch folgenden Vorteil: Sie berücksichtigt außer den Zentralkräften zwischen nächsten Nachbarn auch noch denjenigen Anteil aller übrigen im Kristall wirksamen Kräfte, bei dessen Berücksichtigung die elastischen Konstanten mit den zur Anpassung benutzten Daten denselben formalen Zusammenhang haben, wie bei alleiniger Berücksichtigung der Zentralkraftabstoßung nächster Nachbarn.

Wir extrapolieren zunächst den linearen Verlauf, den die experimentellen Kurven für den Gleichgewichtsabstand $L_g(T)$ nächster Nachbarn bzw. für die reziproke isotherme Kompressibilität $1/\kappa$ als Funktionen der Temperatur bei „großen“ T zeigen, bis hinunter auf $T=0$. Dadurch gewinnen wir [vgl. b) auf S. 513] den statischen Gleichgewichtsabstand L_0 und die statische Kompressibilität κ_0 für Kompression aus der statischen Gleichgewichtslage:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\kappa_0} &= V_z \left. \frac{\partial^2 \Phi_z}{\partial V_z^2} \right|_{v_{lk}=0, L=L_0} = \frac{c_{11}^{(0)} + 2c_{12}^{(0)}}{3} = \frac{Z}{9\sigma L_0} G_0 \\ &= \frac{Z}{9\sigma L_0} \left(\varphi''(L_0) + \frac{2\varphi'(L_0)}{L_0} \right). \end{aligned}$$

Nach (41) wird $\varphi'(L_0) = -\frac{Z_1}{Z} \cdot \frac{e^2}{L_0^3}$.

Mit $L_0, \frac{1}{\kappa_0}$ kennen wir also $\varphi'(L_0)$ und $\varphi''(L_0)$.

Aus (42) folgt für den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha = \frac{1}{L_0} \cdot \frac{dL_g(T)}{dT}$ bei „hohen“ Temperaturen ($\varepsilon = kT$, α konstant):

$$\alpha = -\frac{3k}{Z} \cdot \frac{OG_0}{G_0^2}.$$

α enthält (in OG_0) außer $\varphi'(L_0)$, $\varphi''(L_0)$ noch $\varphi'''(L_0)$: $\varphi'''(L_0)$ läßt sich durch α , $1/\kappa_0$ und L_0 ausdrücken.

Die vierte Ableitung $h = \varphi^{IV}(L_0)$ können wir z.B. so anpassen, daß der Anstieg der experimentellen $c_{11}(T)$ -Kurve durch die theoretische Formel richtig wiedergegeben wird*.

Tabelle 2 enthält die Ausdrücke, die sich für die elastischen Konstanten und für die Nullpunktsenergie $\hbar \omega_0/2$ ergeben, wenn man $\varphi'(L_0)$, $\varphi''(L_0)$ und $\varphi'''(L_0)$ durch

Tabelle 1. Vom Gittertyp abhängige Zahlen in (39), (41)

	NaCl	CsCl
Z [Fig. 2, 4; 5]	6	8
Z_1 [Madelung-Zahl]	1,7476	1,7627
$\sigma = \frac{V_z(L)}{L^3}$ [Fig. 3; 5]	2	$\frac{8}{3\sqrt{3}}$
β [Fig. 4, 5; Gl. (35)]	2	$\frac{8}{9}$
β_c [Gln. (31), (32), (33)]	-3,1385	1,83
γ [siehe β]	0	$\frac{8}{9}$
γ_c [siehe β_c]	0,6955	-1,797

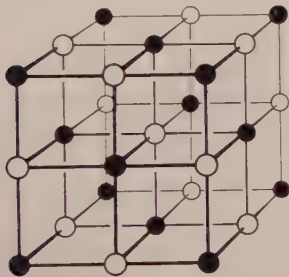


Fig. 2. NaCl-Gitter

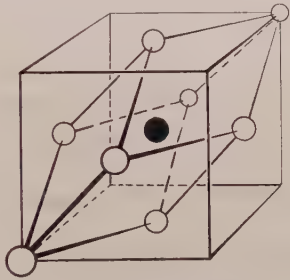


Fig. 3. Form und Lage der Elementarzelle im NaCl-Gitter

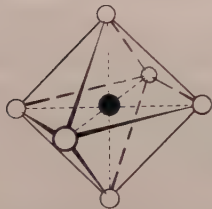


Fig. 4. NaCl, Zentralatom (Na^+) mit nächsten Nachbarn (Cl^-)

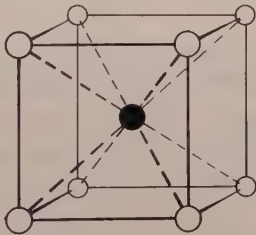


Fig. 5. CsCl-Gitter: Elementarzelle, Zentralatom (Cs^+) mit nächsten Nachbarn (Cl^-)

* Dieser Anstieg kann direkt aus Meßkurven entnommen werden. Man könnte prinzipiell auch die Differenz $c_{11}|_{T=0} - c_{11}^{(0)}$ zur Anpassung von h benutzen, doch ist diese recht klein und die Unsicherheit in ihrer Messung groß, während der lineare Anstieg von c_{11} mit T bei „hohen“ Temperaturen sehr genau gemessen ist.

Tabelle 2. Nullpunktsenergie $\hbar\omega_0/2$; „statische“ Werte $c_{\mu\nu}^{(0)}$, Werte $c_{\mu\nu}|_{T=0}$ bei $T=0$ und Temperaturkoeffizienten bei hohen Temperaturen $\alpha_{\mu\nu}$ der elastischen Konstanten nach der Anpassungsmethode

NaCl		CsCl
$\hbar\omega_0/2$	$\hbar/2 \cdot \sqrt{3L_0/M\kappa_0}$	$\hbar \cdot \sqrt{L_0/M\kappa_0} \sqrt{3}$
$c_{44}^{(0)}$	$0,6955 \cdot e^2/2L_0^4$	$1/\kappa_0 - 1,209 \cdot e^2/L_0 V_z(L_0)$
α_{44}	$-4\alpha c_{44}^{(0)}$	$\hbar \cdot \kappa_0/8L_0^2 - (4c_{44}^{(0)} + 1/\kappa_0)\alpha$ $- \hbar \sqrt{3}/L_0^3 - 0,661 \cdot e^2 \kappa_0/L_0^7$ $- (8/\sqrt{3}) \cdot (L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2)$
$c_{44} _{T=0}$	$c_{44}^{(0)} + \alpha_{44} \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$	$c_{44}^{(0)} + \alpha_{44} \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$
$c_{12}^{(0)}$	$c_{44}^{(0)}$	$c_{44}^{(0)}$
α_{12}	$\alpha_{44} - 6L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2$	$\alpha_{44} - (8/\sqrt{3}) \cdot (L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2)$
$c_{12} _{T=0}$	$c_{44}^{(0)} + [\alpha_{44} - 3L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2] \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$	$c_{44}^{(0)} + [\alpha_{44} - (4/\sqrt{3}) (L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2)] \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$
$c_{11}^{(0)}$	$3/\kappa_0 - 2c_{44}^{(0)}$	$3/\kappa_0 - 2c_{44}^{(0)}$
α_{11}	$\hbar \cdot \kappa_0/6L_0^2 - (4c_{11}^{(0)} + 3/\kappa_0)\alpha$ $- 4\hbar/L_0^3 - 1,165 \cdot e^2 \kappa_0/L_0^7$ $- 24L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2$	$\hbar \cdot \kappa_0/8L_0^2 - (4c_{11}^{(0)} + 1/\kappa_0)\alpha$ $- \hbar \sqrt{3}/L_0^3 - 0,661 e^2 \kappa_0/L_0^7$ $- (16/\sqrt{3}) \cdot (L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2)$
$c_{11} _{T=0}$	$c_{11}^{(0)} + [\alpha_{11} + 3L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2] \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$	$c_{11}^{(0)} + [\alpha_{11} + (4/\sqrt{3}) (L_0^3 \alpha^2/\kappa_0^2)] \cdot \hbar\omega_0/2\hbar$

L_0, κ_0 und α ausdrückt

$$\begin{aligned}
 (\text{Bezeichnungen: } c_{\mu\nu} &= c_{\mu\nu}^{(0)} + T\alpha_{\mu\nu}, & T \text{ „groß“} \\
 c_{\mu\nu} &\approx c_{\mu\nu}|_{T=0}, & T \text{ klein}).
 \end{aligned}$$

Tabelle 1 enthält die dabei benutzten Werte der vom Gittertyp abhängigen Zahlen in den Gl. (39), (41). In Klammern ist die Herleitung angedeutet. β_c und γ_c sind aus (31), (32) und (33) ermittelt unter Benutzung der in der Tabelle angegebenen Werte der Madelung-Zahl Z_1 und der nach MADELG berechneten Schubmoduln

$$\begin{aligned}
 G_1^{\text{NaCl}} &= \frac{1}{V_z} \cdot 1,278 \frac{e^2}{L} \\
 G_1^{\text{CsCl}} &= \frac{1}{V_z} \cdot \left(-1,214 \frac{e^2}{L} \right).
 \end{aligned}$$

Leider sind nur für die Salze KCl, KBr und NaCl, die sämtlich dem *NaCl-Typ* angehören, die elastischen Konstanten als Funktionen der

Tabelle 3. *Dieselben Größen wie in Tabelle 2, berechnet aus dem Born-Mayerschen Überlapp-Potential. Formel zur Berechnung der thermischen Ausdehnung α bei hohen Temperaturen*

	NaCl	CsCl
$a/2$	$\hbar/2 \cdot \sqrt{0,2913 \cdot (A-2) \cdot e^2/M L_0^3}$	$\hbar/2 \cdot \sqrt{0,2938 (A-2) \cdot e^2/M L_0^3}$
α	$1,72 \cdot (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k L_0/e^2$	$1,70 \cdot (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k L_0/e^2$
$\alpha^{(0)}$	$0,6955 \cdot e^2/2 L_0^4$	$[0,196(A+1) - 1,797] \cdot 9e^2/8 \sqrt{3} L_0^4$
α_{44}	$-4\alpha c_{44}^{(0)} = -2,39 \cdot (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k/L_0^3$	$-0,216 \cdot (3A + 12 + 22/A + 24/A^2) \cdot k/L_0^3$ $+ 7,84 \cdot (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k/L_0^3$
$T=0$	$c_{44}^{(0)} + \alpha_{44} \cdot \hbar \omega_0/2k$	$c_{44}^{(0)} + \alpha_{44} \cdot \hbar \omega_0/2k$
$\alpha_{12}^{(0)}$	$c_{44}^{(0)}$	$c_{44}^{(0)}$
α_{12}	$\alpha_{44} - (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/6 L_0^3$	$\alpha_{44} - 0,216 \cdot (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/L_0^3$
$T=0$	$c_{44}^{(0)} - [\alpha_{44} - (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/12 L_0^3] \cdot \hbar \omega_0/2k$	$c_{44}^{(0)} + [\alpha_{44} - 0,108 (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/L_0^3] \cdot \hbar \omega_0/2k$
$\alpha_{11}^{(0)}$	$[0,5825 \cdot (A+1) - 3,1385] \cdot e^2/2 L_0^4$	$[0,196 \cdot (A+1) + 1,830] \cdot e^2/L_0 V_z(L_0)$
α_{11}	$-(A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/6 L_0^3$ $-(3A/2 + 6 - 11/A + 12/A^2) \cdot k/L_0^3$ $+ 10,8 \cdot (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k/L_0^3$	$-0,216 (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/L_0^3$ $-0,216 (3A + 12 + 22/A + 24/A^2) \cdot k/L_0^3$ $-8,09 (1 + 2/A + 2/A^2) \cdot k/L_0^3$
$T=0$	$c_{11}^{(0)} + [\alpha_{11} + (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/12 L_0^3] \cdot \hbar \omega_0/2k$	$c_{11}^{(0)} + [\alpha_{11} + 0,108 (A^2 - 4 - 8/A) \cdot k/L_0^3] \cdot \hbar \omega_0/2k$

Temperatur gemessen*. Nur bei ihnen konnte daher die beschriebene Anpassungsmethode durchgeführt werden.

β) Um wenigstens einen ungefähren theoretischen Überblick über das Verhalten der Salze des CsCl-Typs zu erhalten, wurde die zweite Methode benutzt:

$\varphi(r)$ wurde dem Born-Mayerschen Überlapp-Potential gleichgesetzt:

$$\varphi(r) = C e^{-r/b}.$$

Aus

$$\varphi'(L_0) = -\frac{Z_1}{Z} \cdot \frac{e^2}{L_0^2}.$$

[vgl. (41)] folgen die höheren Ableitungen dann einfach durch Multiplikation mit $-1/b$, $1/b^2$ usw.

* Messungen von BRISCOE und SQUIRE [13] an LiF sind für die Anwendung unserer Anpassungsmethode wenig geeignet, da sie sich nicht bis hinauf zu solchen Temperaturen erstrecken, bei denen die elastischen Konstanten linear mit T ansteigen (wegen der kleinen Massen der Gitterionen ist die Nullpunktsenergie $\hbar \omega(L_0)/2$ sehr groß).

Tabelle 3 enthält die Formeln, die sich für $\hbar\omega(L_0)/2$, den thermischen Ausdehnungskoeffizienten α bei „hohen“ Temperaturen und für die elastischen Konstanten ergeben, wenn man $\varphi'(L_0), \dots, \varphi^{IV}(L_0)$ durch L_0 und $A = L_0/b$ ausdrückt, nach Potenzen von $1/A$ entwickelt und Glieder mit $1/A^2$ gegen solche mit $1/A^3$ gegen solche mit $1/A$ vernachlässigt. (Die Bestimmung von b , zu welcher man z.B. κ_0 heranziehen kann, ergibt nämlich* für alle Alkalihalogenide ungefähr $b = \frac{1}{3} \text{ \AA}$; $A = L_0/b$ hat also die Größenordnung 10).

Infolge des Verschwindens von γ (vgl. Tabelle 1) gilt für die Salze des *NaCl-Typs* (in unserem einfachen Modell mit nicht Coulombscher Wechselwirkung nur nächster Nachbarn):

1. $h = \varphi^{IV}(L_0)$ kommt nur in α_{11} und $c_{11}|_{T=0}$ vor.

2. Die Abweichung des Wertes $c_{44}(T)$ vom „statischen“ Wert läßt sich allein aus der Abweichung des thermischen Gleichgewichtsabstandes $L_g(T)$ vom statischen Abstand erklären, mit anderen Worten: Die Temperaturabhängigkeit von c_{44} wird allein durch die thermische Ausdehnung bewirkt.

Bei den Salzen mit *CsCl-Struktur* ist $\gamma = \beta \neq 0$: h geht in alle drei elastischen Konstanten ein.

c) Ergebnisse der numerischen Rechnung

Tabelle 4 gibt eine Übersicht über gemessene und theoretisch berechnete Werte der elastischen Konstanten als Funktionen der Temperatur.

Für die drei Salze des NaCl-Typs KCl, KBr und NaCl sind in Tabelle 4 die nach Tabelle 2 aus h und den experimentellen Werten von α , L_0 und $1/\kappa_0$ ** berechneten Größen $c_{\mu\nu}^{(0)}$, $\alpha_{\mu\nu}$ und $c_{\mu\nu}|_{T=0}$ mit den entsprechenden gemessenen Daten verglichen***; der Wert von h ist derart angepaßt, daß der berechnete Anstieg α_{11} mit dem gemessenen übereinstimmt.

* Vgl. (12), I, § 3. Dort sind allerdings die Werte von $1/\kappa$ und L_g bei Zimmertemperatur zur Bestimmung benutzt.

** Die experimentellen Werte von α , L_g bei Zimmertemperatur sind den Landolt-Börnsteinschen Tabellen entnommen (in der Nähe der Raumtemperatur ist α für die betreffenden Stoffe einigermaßen temperaturunabhängig, vgl. [9]). $1/\kappa_0 = (c_{11}^{(0)} + 2c_{12}^{(0)})/3$ wurde aus den gemessenen $c_{\mu\nu}(T)$ -Kurven (vgl. [4] bis [8]) ermittelt.

*** Die in der experimentellen Literatur angegebenen, aus Schallgeschwindigkeitsmessungen erhaltenen, *adiabatischen* Konstanten wurden zuvor nach der Formel $c_{44}^{\text{ad.}} - c_{44}^{\text{is.}} = 0$, $c_{12}^{\text{ad.}} - c_{12}^{\text{is.}} = c_{11}^{\text{ad.}} - c_{11}^{\text{is.}} = \frac{VT(3\alpha)^2}{c_v \cdot \kappa_{\text{is}}^2}$ (siehe z.B. [2]) unter der Annahme $\gamma = \frac{3\alpha V}{c_v \cdot \kappa_{\text{is}}} = \text{const}$ (= „Grüneisenkonstante“) auf isotherme Konstanten umgerechnet ($c_v(T)/V(T)$ s. [10], [11]).

	KCl		KBr		NaCl		CsCl	
	experimentell	theoretisch nach Tab. 2 nach Tab. 3	experimentell	theoretisch (Tabelle 2)	experimentell	theoretisch (Tabelle 2)	experimentell	theoretisch (Tabelle 3)
L_0	$[10^{-8} \text{ cm}]$							
$1/\alpha_0$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
α	$[10^{-5}/\text{Grad}]$							
$\frac{\hbar \omega_0}{2\hbar} = \frac{\hbar \sqrt{\omega_0^2}}{2\hbar} \Big _{L=L_0, v_{ik}=0}$	[Grad]							
$c_{44}^{(0)}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
α_{44}	$\left[10^7 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3 \cdot \text{Grad}}\right]$							
$c_{44} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$c_{44}^{(0)} - c_{44} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$c_{12}^{(0)}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
α_{12}	$\left[10^7 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3 \cdot \text{Grad}}\right]$							
$c_{12} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$c_{12}^{(0)} - c_{12} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$c_{11}^{(0)}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
α_{11}	$\left[10^7 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3 \cdot \text{Grad}}\right]$							
$c_{11} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$c_{11}^{(0)} - c_{11} _{T=0}$	$[10^{11} \text{ erg/cm}^3]$							
$(c_{44}^{(0)} - c_{44}^{(0)})/c_{44}^{(0)}$								

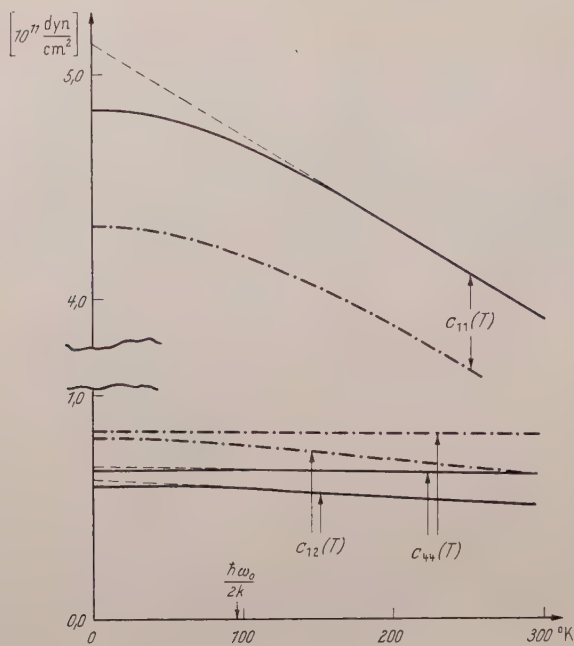


Fig. 6. Experimenteller (—) und theoretischer (---) Temperaturverlauf der isothermen elastischen Konstanten von KCl. (---): lineare Extrapolation auf $T=0$

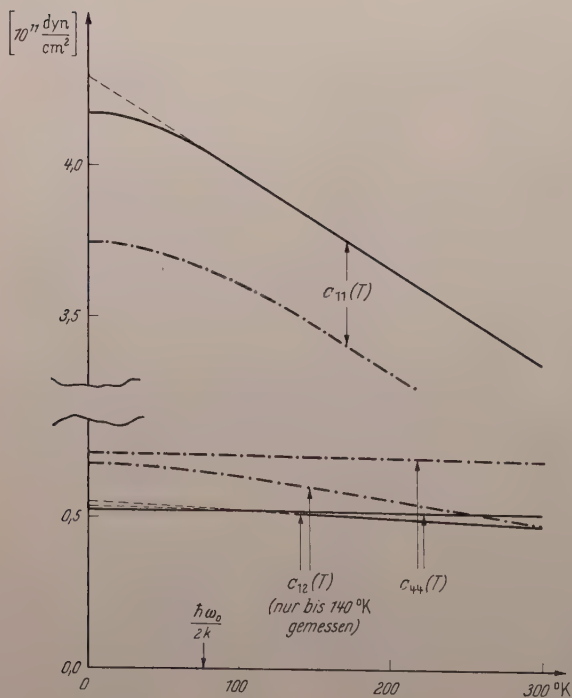


Fig. 7. Temperaturverlauf der elastischen Konstanten von KBr (Legende s. Fig. 6)

In Tabelle 4 ist auch die Nullpunktsenergie in Grad angegeben (als diejenige Temperatur, bei welcher $kT = \hbar\omega_0/2$ wird).

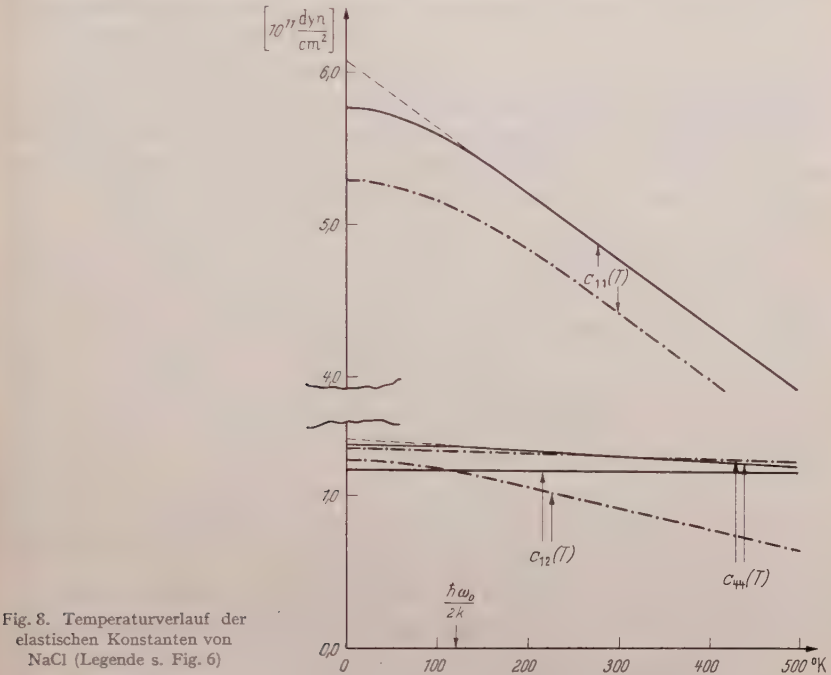


Fig. 8. Temperaturverlauf der elastischen Konstanten von NaCl (Legende s. Fig. 6)

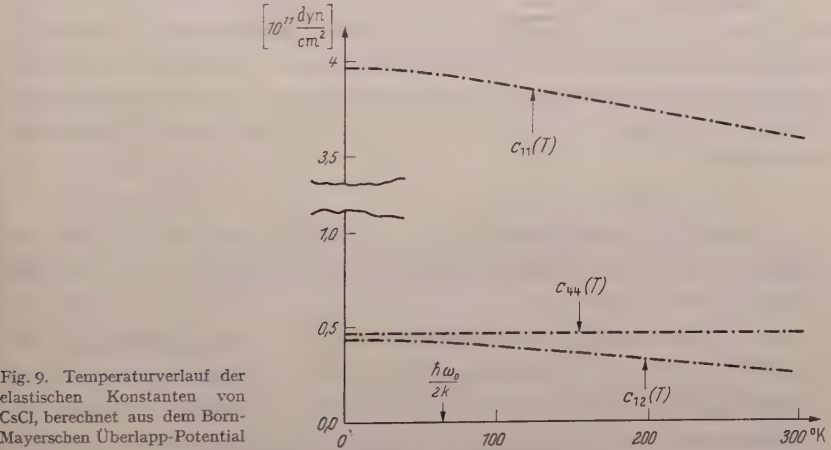


Fig. 9. Temperaturverlauf der elastischen Konstanten von CsCl, berechnet aus dem Born-Mayerschen Überlapp-Potential

Für Caesiumchlorid sind in Tabelle 4 die unter der Annahme $\varphi(r) = Ce^{-r/b}$ ($\varphi(r) \equiv$ Born-Mayer-Potential) nach Gl. (41) und Tabelle 3 aus L_0 und $A = L_0/b$ berechneten Werte von α (nebst experimentellem

Wert bei Zimmertemperatur), $c_{\mu\nu}^{(0)}$, $\alpha_{\mu\nu}$ und $c_{\mu\nu}|_{T=0}$ aufgeführt. Dabei wurde $b = \frac{1}{3} \text{ \AA}$ gesetzt.

Zum Zwecke des Vergleichs mit den Resultaten der Anpassungsmethode enthält Tabelle 4 auch die nach BORN und MAYER berechneten Werte von α , $c_{\mu\nu}^{(0)}$, α_{11} , α_{12} , α_{44} und $\hbar\omega_0/2$ für Kaliumchlorid. Die Ergebnisse beider Methoden stimmen größenordnungsmäßig überein.

In den Fig. 6—9 sind berechnete und gemessene elastische Konstanten als Funktionen der Temperatur dargestellt. Fig. 10 zeigt die Änderung von L_g mit der Temperatur für Caesiumchlorid.

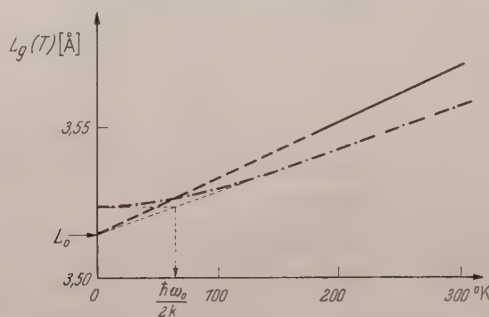


Fig. 10. Thermische Ausdehnung von CsCl: Experimentelle (—) und aus dem Born-Mayer-Potential berechnete (---) $L_g(T)$ -Kurve

4. Diskussion der Ergebnisse

a) Ergebnisse der Rechnung (vgl. Tabelle 4 und Fig. 6—10)

1. Bei hohen Temperaturen verlaufen die gittertheoretisch berechneten elastischen Konstanten c_{11} , c_{12} und c_{44} (wie auch der Gleichgewichtsabstand nächster Nachbarn) *linear* mit der Temperatur. Während L_g mit steigender Temperatur zunimmt, nehmen die isothermen elastischen Konstanten ab. Für $T \rightarrow 0$ werden L_g und die $c_{\mu\nu}$ temperaturunabhängig.

2. a) Es ist stets $c_{44} > c_{12}$.

b) Die „Cauchy-Relation“ $c_{44} = c_{12}$ ist jedoch für die aus dem linearen Verlauf bei hohen Temperaturen extrapolierten „statischen“ Werte $c_{44}^{(0)}$ und $c_{12}^{(0)}$ erfüllt.

3. c_{11} hängt stark von der Temperatur ab. c_{12} ist schwach, c_{44} noch schwächer temperaturabhängig.

c_{11} ist rund fünfmal so groß wie c_{12} und c_{44} .

b) Vergleich mit Meßergebnissen

α) NaCl-Typ. Messungen des Temperaturverlaufs der elastischen Konstanten liegen leider nur für die Alkalihalogenide KCl [4], KBr [5] und NaCl [4], [6], [7], [8] vor (vgl. Fußnote * auf S. 517).

Die (nach der Anpassungsmethode) berechneten und die gemessenen Werte der elastischen Konstanten stimmen qualitativ gut überein. Bei quantitativer Betrachtung zeigen sich vom KCl, KBr zum NaCl hin zunehmend Diskrepanzen.

(1), (2a) und (3) sind experimentell bestätigt, allerdings hängt für NaCl c_{44} stärker als c_{12} von der Temperatur ab, so daß sich die Kurven für $c_{44}(T)$ und $c_{12}(T)$ etwa bei 600°K schneiden.

(2b) ist bei KCl und KBr recht gut (bis auf weniger als 10%), bei NaCl schlechter [$(c_{44}^{(0)} - c_{12}^{(0)})/c_{12}^{(0)} \approx 20\%$] erfüllt.

Zur Erklärung der Abweichungen des theoretischen Verlaufs der elastischen Konstanten vom experimentellen reichen die in der experimentellen Literatur angegebenen *Meßungenauigkeiten* von wenigen Prozent nicht aus. Auch wäre ein Zunehmen dieser Ungenauigkeiten von KCl, KBr zum Natriumchlorid hin unverständlich, da NaCl am häufigsten und gründlichsten untersucht worden ist.

Die bei der *theoretischen* Berechnung der elastischen Konstanten gemachten Näherungsannahmen, die numerisch ins Gewicht fallen könnten, sind:

1. Die adiabatische Näherung (keine Elektronen-Quantensprünge bei Kernbewegungen und Gitterschwingungen),

2. die quasiharmonische Näherung (Berücksichtigung höchstens quadratischer Glieder in den Auslenkungen der Atome aus den vorgegebenen, verzerrten Mittellagen, s. Abschnitt 2b),

3. die Linearisierung in $\hbar \sqrt{\omega^2}/2$ bzw. kT ,

4. der Ersatz des Gitterspektrums durch einen Einstein-Term der Frequenz $\sqrt{\omega^2}$,

5. die Beschränkung der nicht Coulombschen Wechselwirkung zwischen den Gitteratomen auf

a) Zentralkräfte und

b) nächste Nachbarn.

1. Die adiabatische Näherung sollte bei den Alkalihalogeniden, die dem Ideal eines Kristalls mit reiner Ionenbindung recht nahe kommen, sehr gut erfüllt sein.

2. Abweichungen von der quasiharmonischen Näherung würden (vgl. [2], [3], Fußnote * auf S. 511) ebenso wie

3. die Unrichtigkeit der Linearisierung in $\varepsilon(T)$ nur solche Korrekturen an den $c_{\mu\nu}(T)$ -Kurven bewirken, die bei „hohen“ Temperaturen mit der zweiten Potenz oder höheren Potenzen der Temperatur gehen. Die experimentellen $c_{\mu\nu}(T)$ -Kurven verlaufen aber über ein Temperaturintervall von 200 bis 300 Grad Breite hinweg recht genau linear: die Einflüsse der Abweichungen von den Näherungen 2. und 3. auf die

elastischen Konstanten, sind entweder sehr klein oder heben sich gegenseitig auf.

4. Die Einstein-Term-Näherung zur Berechnung der freien Energie führt (vgl. [3]) für die uns hier allein interessierenden *Ableitungen* der freien Energie nach den Verzerrungen bei tiefen und „hohen“ Temperaturen zu praktisch exakten Resultaten.

So kommt für eine Deutung der Unterschiede zwischen Theorie und Experiment schließlich im wesentlichen nur der Einfluß

5. a) der nichtzentralen Kräfte („Mehrkörperkräfte“),

b) der nicht Coulombschen Kräfte zwischen weiter entfernten Ionen, vor allem zwischen übernächsten (gleichen) Nachbarn in Betracht.

Daß dieser Einfluß vom KCl zum NaCl hin zunimmt, macht man sich leicht folgendermaßen plausibel:

Vom KCl, KBr zum NaCl hin entfernt sich das Ionenradienverhältnis immer weiter vom Wert 1. Die größeren Halogenionen kommen sich um so „näher“, je kleiner die Alkaliionen werden: die Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn gewinnt an Bedeutung; außerdem wächst die deformierende Wirkung des (im Verhältnis zum Anion kleiner werdenden) Kations auf das Anion und damit der für Mehrkörperkräfte verantwortliche, gerichtete Bindungsanteil.

Das Zunehmen des Anteils der Mehrkörperkräfte kann man direkt am Zunehmen der Abweichung von der Cauchy-Relation $c_{12}^{(0)} = c_{44}^{(0)}$ von KCl, KBr (relative Abweichung $(c_{44}^{(0)} - c_{12}^{(0)})/c_{44}^{(0)}$ unter 10%) zum NaCl (Abweichung etwa 20%) verfolgen.

Die aus Born-Mayer-Kräften und (zu einem recht erheblichen Anteil) aus Van-der-Waals-Kräften bestehenden Restzentralkräfte zwischen übernächsten Nachbarn könnte man im Prinzip noch genauer berücksichtigen. Die hierauf verwandte Mühe würde sich aber nicht lohnen, da gleichzeitig Mehrkörperkräfte auftreten, zu deren zahlenmäßiger Berücksichtigung es an geeigneten Ansätzen fehlt.

Eine Abschätzung der Größenordnung des Einflusses der Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn an Hand des Born-Mayer-schen Potentials, auf die hier nicht näher eingegangen sei, läßt das Bild der Kurven $c_{\mu\nu}(T)$ qualitativ ungeändert. In quantitativer Hinsicht treten vor allem bei c_{44} merkliche Änderungen auf (c_{44} wird stärker temperaturabhängig, wodurch die Übereinstimmung von Experiment und Theorie verbessert wird).

β) *CsCl*. Für Salze des CsCl-Typs liegen leider keine Messungen der elastischen Konstanten als Funktionen der Temperatur vor.

Die allein aus dem Born-Mayer-Potential zwischen nächsten Nachbarn ermittelten Werte der Tabelle 4 für *CsCl* geben aus zwei Gründen nur eine qualitative Übersicht:

1. Obwohl das Radienverhältnis des CsCl nahe bei eins liegt, sollte die Wechselwirkung übernächster Nachbarn stark ins Gewicht fallen, da der Abstand nächster Nachbarn und der Abstand übernächster Nachbarn im CsCl-Gitter fast gleich sind (s. Fig. 5).

2. Infolge der außerordentlich großen Polarisierbarkeit des Cs-Ions stellen Polarisationskräfte einen weit größeren Anteil der Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn als etwa bei NaCl oder KCl.

Die theoretische $L_g(T)$ -Kurve stimmt jedoch mit der experimentellen recht gut überein (vgl. Fig. 10).

Literatur

- [1] BORN, M.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **39**, 100 (1943). — BORN, M., and M. BRADBURN: Proc. Cambridge Phil. Soc. **39**, 104 (1943). — BRADBURN, M.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **39**, 113 (1943). — GOW, M.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **40**, 151 (1944). — [2] LEIBFRIED, G.: Handbuch der Physik, Bd. VII/1, S. 104—324, insbes. S. 279—287. Berlin: Springer 1955. — [3] LUDWIG, W.: Diss. Göttingen 1957. — J. Phys. Chem. Solids **4**, 284 (1958). — [4] DURAND, M.A.: Phys. Rev. **50**, 449 (1936). — [5] GALT, J.K.: Phys. Rev. **73**, 1460 (1948). — [6] ROSE, F.C.: Phys. Rev. **49**, 50 (1936). — [7] HUNTER, L., and S. SIEGEL: Phys. Rev. **61**, 84 (1942). — [8] OVERTON, W.C., and R.T. SWIM: Phys. Rev. **84**, 758 (1951). — [9] EUCKEN, A., u. W. DANNÖHL: Z. Elektrochem. **40**, 814 (1934). — [10] CLUSSIUS, K., J. GOLDMANN u. A. PERLICK: Z. Naturforsch. **4a**, 424 (1949). — [11] HENGLEIN, A.: Z. phys. Chem. **115**, 91 (1925). — [12] BORN, M., and K. HUANG: Dynamical Theory of Crystal Lattices. Oxford 1954. — [13] BRISCOE, C.V., and C.F. SQUIRE: Phys. Rev. **106**, 1175 (1957).

Berichtigung

zu BARTELS, H., u. R. BEUCHELT, „Über die typischen Erscheinungsformen im Spektrum dichter Plasmen. I“, erschienen in Z. Physik **149**, 594–607 (1957).

In den Formeln sind einige Schreib- und Druckfehler übersehen worden. Auf S. 598 ist in Gl. (5) und (8) auf der linken Seite die Bezeichnung der Strahldichte I_λ an Stelle von J_λ zu setzen.

Formel (5) muß also richtig heißen:

$$I_\lambda = \Phi \cdot \int_{-x_0}^{+x_0} J_\lambda(x) \cdot \kappa(x) \cdot dx, \quad (5)$$

und Formel (8):

$$I_\lambda = J_{\lambda \max} \cdot M \cdot Y(\tau_0). \quad (8)$$

Außerdem lautet Formel (9) auf S. 600:

$$\bar{Y}(\tau_0, p) = e^{-\frac{\tau_0}{2}} \cdot \left\{ \left[\frac{\tau_0}{2} (1-p) + p \operatorname{Sin} \frac{\tau_0}{2} \right] + \frac{1}{\sqrt{p}} \operatorname{Sin} \frac{\tau_0 \sqrt{p}}{2} \right\} \quad (9)$$

und die letzte Formel auf S. 604:

$$p = \frac{6}{\pi} \arctg \frac{M^2}{\sqrt{1 + 2M^2}}.$$

Aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt

Der Einfluß von Oberflächenfremdschichten auf die Strukturveränderungen dünner Metallaufdampfschichten beim Tempern*

Von

KARL-JOSEPH HANSZEN**

Mit 15 Figuren im Text

(Eingegangen am 25. September 1957)

An Hand von elektronenmikroskopischen Aufnahmen wird dargelegt, wie weit die nach dem Vakuumtempern von Metallaufdampfschichten beobachteten Aggregationen zu abgerundeten Partikeln und ihre Aufzehrung durch Sublimation bzw. Oberflächendiffusion auf die Einwirkung von Oberflächenfremdschichten zurückzuführen sind. Die Untersuchungen erstrecken sich auf Adsorptionsschichten, die sich bei der Kondensation der Schichten und der anschließenden Lagerung im Hochvakuum aus den Restgasen an den Oberflächen der Aufdampfschicht ablagern, auf spontan sich bildende Oberflächen-Oxydschichten und auf nachträglich aufgebraute Fremdschichten, wie die bei den elektronenmikroskopischen Aufnahmen niedergeschlagenen Kohlenwasserstoffpolymerisate oder durch Aufdampfen erzeugte Kohlebedeckungen. Zum Teil vermögen diese Fremdschichten die Struktur des darunterliegenden Metalls vor Veränderungen zu schützen, zum Teil begünstigen sie das Zusammenlaufen und die Aufzehrung der Schichten.

Schon frühzeitig¹ wurde die Elektronenmikroskopie zu Strukturuntersuchungen an Aufdampfschichten herangezogen. Mit ihrer Hilfe gelang es vor allem, die direkte visuelle Bestätigung für die lückenhafte Belegung dünnster Schichten zu erbringen, auf die aus früheren elektrischen und optischen Untersuchungen nur indirekt geschlossen werden konnte. Der Einfluß spezieller Versuchsparameter, wie Art und Temperatur der Kondensationsfläche, Wachstumsgeschwindigkeit der Schicht usw. wurden in späteren Arbeiten² näher untersucht und vielfach im Zusammenhang mit den geläufigen theoretischen Vorstellungen³ über

* Auszugsweise vorgetragen auf der Tagung des Verbandes der Deutschen Physikalischen Gesellschaften am 20. 9. 1954 in Hamburg und der Tagung der Norddeutschen Physikalischen Gesellschaft am 25. 4. 1957 in Münster (Westf.).

** Braunschweig, Physikalisch-Technische Bundesanstalt.

¹ Die ersten Aufnahmen stammen von MAHL, H.: Z. techn. Phys. **20**, 316 (1939).

² HASS, G.: Kolloid-Z. **100**, 230 (1942). — PICARD, R. G., u. O. S. DUFFENDACK: J. Appl. Phys. **14**, 291 (1943). — LEVINSTEIN, H.: J. Appl. Phys. **20**, 306 (1949). — BOETTCHER, A., u. G. HASS: Optik **6**, 299 (1950). — SENETT, R. S., u. G. D. SCOTT: J. Opt. Soc. Amer. **40**, 203 (1950).

³ Zusammenfassendes hierüber bei MAYER, H.: Physik dünner Schichten, Bd. 2, Kap. I. Stuttgart 1955.

die Bildung dieser Schichten diskutiert. Die Wachstumstheorien gehen aber von idealisierten Verhältnissen aus: vor allem berücksichtigen sie nicht die mögliche Einwirkung von Restgasmolekeln, die während der Kondensation mit in die Aufdampfschicht eingebaut oder auf der Oberfläche der frisch gebildeten Schicht adsorbiert werden können. Bei dem jetzigen Stand der Hochvakuumtechnik muß aber unter den üblichen Bedingungen mit solchen Erscheinungen gerechnet werden.

Gegenstand der vorliegenden Untersuchungen ist es daher, den Einfluß dieser und anderer, künstlich aufgebracht Fremdschichten soweit zu klären, wie dies mit elektronenmikroskopischen Mitteln möglich ist. Besonderes Augenmerk soll hierbei auf die bereits bekannten Strukturveränderungen durch nachträgliches Tempern gelegt werden, da zu erwarten ist, daß die bei dieser Behandlung auftretenden Oberflächenveränderungen wesentlich durch die Fremdschichten beeinflußt werden und daher wichtige Rückschlüsse auf das Vorhandensein und die Wirkung dieser Bedeckungen zulassen.

Experimentelles

Verdampfung

Untersucht wurden Silber-, Gold-, Kupfer- und Wismutschichten. Als Kondensationsflächen dienten über Platinblenden gespannte Kollodium-, Siliziummonoxyd-⁴ oder Kohlefolien⁵ auf Raumtemperatur. Sie hatten, wenn nichts anderes angegeben ist, zwischen Herstellung und Bedampfung mit Luft in Berührung gestanden. Die Verdampfung von Silber, Gold und Kupfer erfolgte von U-förmig gebogenen, direkt geheizten Wolframdrähten, an denen die zur Erzeugung der gewünschten Schichtdicke benötigte Metallmenge angeschmolzen und entgast wurde, bevor eine Bedampfung der Kondensationsfläche stattfinden konnte. Wismut wurde aus Sinterspinelltiegelchen verdampft. Der Abstand zwischen Verdampfungsquelle und Kondensationsfläche betrug stets 10 cm, die Verdampfungszeiten lagen zwischen einer Sekunde und 10 Minuten.

Die Verdampfung erfolgte in einem Metallgefäß mit gefetteten Gummidichtungen. Das Vakuum wurde mit einer Öldiffusionspumpe erzeugt. Nach der Anzeige eines Ionisationsmanometers* lag der Restdruck bei den meisten Verdampfungen zwischen 1 und $5 \cdot 10^{-5}$ Torr. Nach den Untersuchungen von BLEARS⁶ dürften sich die Restgase hauptsächlich aus Wasserdampf und organischen Dämpfen zusammengesetzt haben.

Tempern

Die Schichten wurden in Kupferöfchen (s. Fig. 1) bei 10^{-4} Torr erhitzt. Bei Verwendung des Ofens nach Fig. 1b konnte eine Berührung der Präparate mit der

* Vergleichsmessungen mit einem gleichzeitig angeschlossenen Vakuummeter nach PENNING zeigten um den Faktor 2 kleinere Drucke. Nach genaueren Untersuchungen erklärte sich dieser Unterschied durch Gasabgabe des einen und Gasauzföhrung des anderen Geräts.

⁴ HASS, G., u. H. KEHLER: *Optik* **5**, 48 (1949).

⁵ BRADLEY, D.E.: *Brit. J. Appl. Phys.* **5**, 65 (1954).

⁶ BLEARS, J.: *J. Sci. Instrum.* **28**, Suppl. Nr. 1, 36 (1951).

Außenluft zwischen Kondensation und Temperung vermieden werden. In beiden Öfen war für guten Wärmekontakt zwischen Objektträgern und Ofenblock gesorgt.

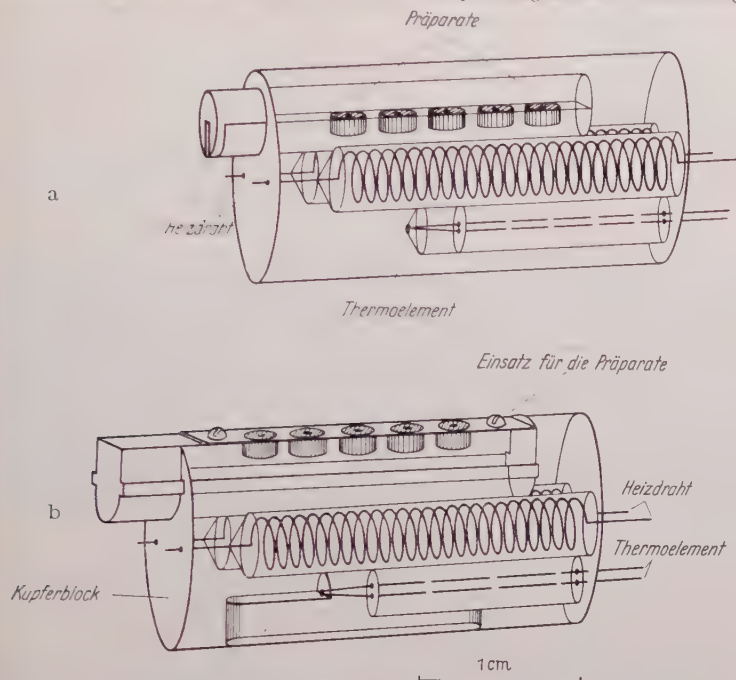


Fig. 1 a u. b. Kupferöfen zur Durchführung der Präparaterhitzungen im Vakuum. Der Übersicht halber wurden die Vorrichtungen zum Festklemmen der Thermolötstellen an den Kupferblock und die Glimmerisolation zwischen Heizspiralen und Kupferblock nicht eingezeichnet.

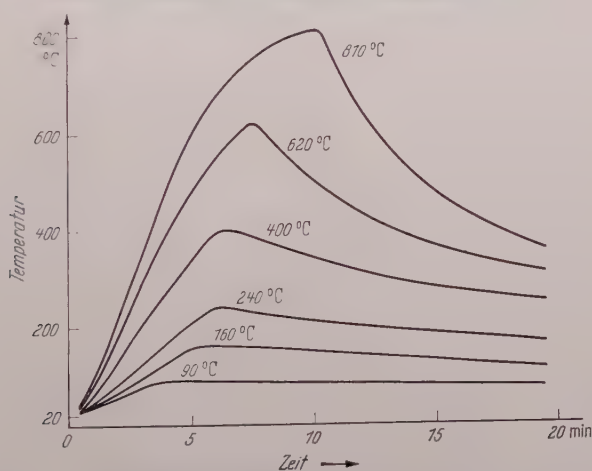


Fig. 2. Zeitlicher Temperaturverlauf im Vakuumofen

Die Ofentemperaturen wurden mit Ni-CrNi-Thermoelementen gemessen. Oberhalb 700 °C wurden vergleichsweise auch pyrometrische Messungen der Ofen- oder

Objektträgertemperatur durchgeführt. Eine mit Graphitpulver geschwärzte Oberflächenstelle wurde dabei als schwarzer Strahler angesehen. Die Reflexionsverluste am Fenster des Vakuumgefäßes wurden durch entsprechende Pyrometer-Eichung* eliminiert.

Der zeitliche Temperaturverlauf der Erhitzungen ist in Fig. 2 wiedergegeben. Die unter den folgenden Figuren angegebenen Temperaturen beziehen sich auf die Maximaltemperatur der einzelnen Erhitzungskurven.

Zwischen Erhitzung und elektronenmikroskopischer Aufnahme wurden die Präparate im Vakuum aufbewahrt. Eine kurzzeitige Berührung mit der Luft beim Übertragen in das Elektronenmikroskop konnte jedoch nicht vermieden werden.

Schichtdickenbestimmung und Wahl der Schichtdicke

Die Schichtdicken wurden lichtoptisch mit Hilfe von Mehrstrahlinterferenzen⁷ in der von DÜHMKE angegebenen Anordnung⁸ bestimmt. Bei den Versuchen wurde der Schichtdickenbereich von etwa 20 bis 300 Å erfaßt, in dem das Zusammenwachsen der zunächst isoliert liegenden Teilchen zu einer geschlossenen Schicht stattfindet. Da die auffälligsten Veränderungen bei nachträglichem Tempern an Schichten auftraten, die nur noch enge Risse aufwiesen, wurden die meisten Untersuchungen an Schichten dieser Struktur durchgeführt.

Schichten ohne künstlich aufgebraachte Bedeckungen

Wie in früheren Mitteilungen⁹ dargelegt wurde und in den folgenden Abschnitten näher erläutert werden soll, vermögen die durch Bestrahlung im Elektronenmikroskop auf den Präparaten abgelagerten Bedeckungen die Präparatveränderungen bei nachträglichem Tempern wesentlich zu beeinflussen. Daher läßt sich die Temperaturabhängigkeit der an den ursprünglichen Schichtstrukturen auftretenden Veränderungen nicht während des Temperns selbst durch fortlaufende elektronenmikroskopische Beobachtung des gleichen Objektbereichs untersuchen. Für jede Erhitzung wird vielmehr ein eigenes Präparat benötigt, das erst nach dem Tempern elektronenmikroskopisch betrachtet werden kann. Dieses Vorgehen schließt den Nachteil in sich, daß innerhalb jeder Erhitzungsserie die Veränderungen einer Vielzahl von Präparaten mit individuellen Unterschieden der Anfangsstruktur zu einander in Beziehung gebracht werden müssen. Um die hierdurch bedingte Unsicherheit gering zu halten, wurden in jeder Erhitzungsserie nur Präparate verwendet, die im gleichen Verdampfungsprozeß hergestellt waren.

* Hierfür bin ich Herrn Dr. TINGWALDT und Herrn Dipl.-Phys. KENZ zu Dank verpflichtet.

⁷ DÜHMKE, M.: Phys. Z. **44**, 10 (1943). — TOLANSKY, S.: Multiple Beam Interferometry, S. 147. Oxford 1948.

⁸ DÜHMKE, M., u. K.-G. GEORGI: Metall **7**, 1000 (1953). Herrn Dr. DÜHMKE bin ich für die genaue Vermessung dieser Schichten zu bestem Dank verpflichtet.

⁹ HANSZEN, K. J.: Z. Ver. dtsch. Ing. **98**, 1700 (1956). — Z. Naturf. **11a**, 878 (1956).

Veränderungen durch Tempern bis 700 °C

Fig. 3 zeigt den generellen Verlauf einer solchen Erhitzungsreihe an Silberaufdampfschichten, bei denen besonders auffällige Veränderungen auftreten. Der morphologische Schichtaufbau dieses Metalls ist so instabil, daß bereits geringe Temperaturerhöhungen ausreichen, um eine Abrundung der unregelmäßigen Oberflächen und damit eine Verbreiterung der vorhandenen Risse zu verursachen. Dieser Prozeß setzt sich beim Erhitzen auf höhere Temperaturen fort, bis nur noch isolierte Partikel mit fast völlig abgerundeten Oberflächen vorhanden sind.

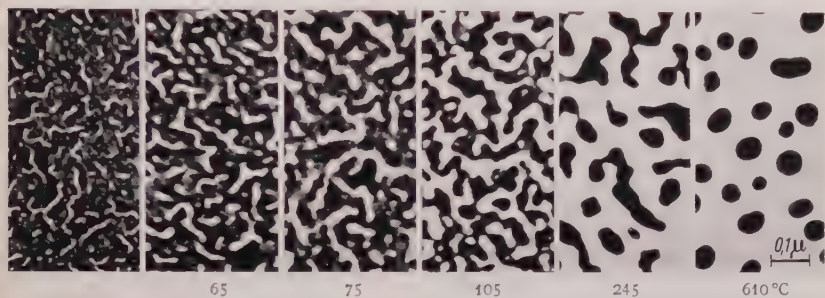


Fig. 3. 100 Å dicke Silberschichten (Aufdampfzeit 3 Sekunden, Vakuum $2 \cdot 10^{-6}$ Torr, Unterlage SiO). Links: Zustand nach der Kondensation, rechts: nach dem Tempern auf die unter den Teilbildern angegebenen Temperaturen

Die Größe der entstehenden Aggregate ist im wesentlichen durch die Anordnung und Ausdehnung der vor dem Tempern vorliegenden Lücken bestimmt. In Schichten geringer Dicke, die ursprünglich bereits aus isolierten Partikeln meist unregelmäßiger Gestalt aufgebaut sind, findet im allgemeinen nur eine Abrundung der vorhandenen Teilchen statt. In dickeren Schichten mit Rißstruktur entstehen durch Aufreißen der engsten Verbindungsstellen Aggregate, die um so größer sind, je weniger zahlreich die Risse sind und je dicker die Schicht ist. Aber auch die Schichten größter Dicke mit lückenloser Belegung aggregieren bei höheren Temperaturen (vgl. z.B. Fig. 6). Vermutlich beginnt hier das Aufreißen an Fehlstellen in der Schicht. Das Erscheinungsbild der Aggregation bei nachträglichem Tempern ist also zum erheblichen Teil durch die bei der Schichtherstellung vorliegenden Versuchsparameter, in unserem Fall also insbesondere durch die Kondensationsbedingungen bei Raumtemperatur bestimmt und unterscheidet sich darum wesentlich von dem der Aggregatbildung bei der Kondensation von Metallen auf Unterlagen erhöhter Temperatur¹⁰. Wenn die Aggregation abgeschlossen ist, treten bis etwa 700 °C keine weiteren Veränderungen mehr auf, wie es besonders an dünneren Schichten deutlich wird (Fig. 4a und b).

¹⁰ HANSZEN, K.-J.: Phys. Verh., Mosbach 6, 36 (1955). Ausführliche Veröffentlichung ist in Vorbereitung.

Erst bei extrem dünnen Silberschichten einer mittleren Dicke von weniger als 20 Å, die aus getrennt liegenden Körnern von weniger als 100 Å Durchmesser bestehen, treten beim Tempern neue Erscheinungen auf: Mit zunehmender Temperatur verringert sich die Zahl der Teilchen und die Größe der verbleibenden wächst auf den mehrfachen Wert ihres Durchmessers an. Als Hauptursache hierfür muß die Oberflächendiffusion des Silbers längs der Unterlage, die von WEGENER¹¹ lichtmikroskopisch an Kalium auf Quarz sehr genau untersucht wurde, in Betracht gezogen werden. Ein Materietransport von den abnehmenden zu den anwachsenden Teilchen über den Dampfraum kann kaum in Erwägung gezogen werden, da im vorliegenden dynamischen Vakuum nur ein Bruchteil der verdampfenden Atome Aussicht hat, an einer anderen Präparatstelle wieder kondensiert zu werden, so daß sich also im Ganzen ein Materieverlust im Präparat bemerkbar machen müßte, der bei den benutzten Temperaturen nicht aufgetreten ist. Im Gegensatz zu den Untersuchungen von WEGENER handelt es sich im vorliegenden Fall allerdings nicht um einen Diffusionsvorgang zwischen flüssigem (unterkühltem) und kristallinem Metall, sondern zwischen kleineren und größeren Teilchen der kristallinen Phase, die durch eine zweidimensionale „Dampfdruckerhöhung“ kleinster Teilchen im Thomsonschen Sinne in Gang kommt¹².

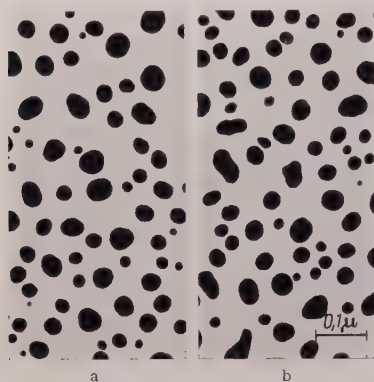


Fig. 4 a u. b. Struktur von 60 Å dicken Silberschichten (Aufdampfzeit 3 Sekunden, Vakuum $6 \cdot 10^{-5}$ Torr, Unterlage SiO) nach Tempern a auf 250 °C; b auf 620 °C

Aus diesen Gründen ist es erklärlich, daß die beobachteten Erscheinungen, deren zeitliche Verfolgung aus den am Anfang dieses Hauptabschnittes erwähnten Gründen im Elektronenmikroskop ohnehin nicht möglich ist, nicht so ausgeprägt wie an lichtmikroskopischen Präparaten auftreten. Trotzdem wurden in einigen Sonderfällen sogar Andeutungen von „Hofbildungen“ beobachtet.

Bei Silberschichten über 50 Å Dicke, auf die sich die folgenden Ausführungen beschränken, treten diese Effekte jedoch im Erscheinungsbild völlig zurück. Auch die Sublimation ins Vakuum führt bis 700 °C in Übereinstimmung mit der Berechnung der Verdampfungsgeschwindigkeit nach der Knudsenschen Formel unter Zugrundelegung der mit der Thomsonschen Gleichung korrigierten Dampfdruckwerte des Silbers zu keinem erkennbaren Substanzverlust. Schließlich müssen auch Schmelzerscheinungen durch eine Schmelzpunktniedrigung kleiner Partikel ausgeschlossen werden, da die bei den fraglichen Temperaturen durchgeführten Elektronenbeugungsaufnahmen stets das Diagramm der kristallinen Phase aufweisen¹².

Neben den bis jetzt beschriebenen Oberflächenveränderungen finden auch im Innern der Teilchen Umwandlungen statt. Nach Auskunft der im Elektronenbild auftretenden Bragg'schen Interferenzstreifen handelt es sich nach der Kondensation meist um sehr feinkristallines Material. Beim Tempern findet dann eine erhebliche Sammelkristallisation statt, so daß die endgültig sich herausbildenden Aggregate im Innern eine sehr

¹¹ WEGENER, H.: Z. Physik **139**, 464 (1954).

¹² Vgl. HANSZEN, K.-J.: Phys. Verh., Mosbach **8**, 193 (1957).

regelmäßige Kristallstruktur besitzen und in vielen Fällen als Einkristalle anzusehen sind. Auch Orientierungen dieser Kristalle zur Unterlage konnten nach dem Tempern beobachtet werden.

Um zu klären, ob die vorgenommenen Erhitzungen, bei denen sich die Proben nach Fig. 2 nur für sehr kurze Zeit auf der Maximaltemperatur befanden, bereits zu einem für diese Temperatur charakteristischen Endwert führten, wurden weitere Erhitzungen durchgeführt, bei denen die Maximaltemperatur 2 Stunden lang aufrecht erhalten wurde. Hierbei trat aber nur ein unwesentlicher Fortschritt der Veränderungen ein.

Einfluß der Unterlage. Sowohl die Strukturen der Schichten nach der Kondensation wie auch ihre Neigung zu Veränderungen beim Tempern hängen weitgehend von der Schichtunterlage ab. So wiesen Silberschichten auf Kollodiumfilmen gegenüber solchen auf Siliziummonoxyd oder Kohleunterlagen weniger Risse und, besonders bei dickeren Schichten, kleinere Kristalle auf und waren gegenüber Temperatureinflüssen, solange die Kollodiumfolie durch das Tempern nicht zerstört wurde, bedeutend widerstandsfähiger als auf den anderen Unterlagen. Kupferaufdampfschichten zeigten auf Siliziummonoxyd weniger Risse als auf Kohle.

Einfluß der Wachstumsgeschwindigkeit und der Güte des Vakuums. Durch Variation der Verdampfungszeit von 1 Sekunde bis 10 Minuten* ergaben sich ähnliche systematische Strukturunterschiede wie in den Untersuchungen von SENNETT und SCOTT². Im einzelnen wurde folgendes festgestellt: Unzusammenhängende Schichten bestehen aus kleineren Kristallen unregelmäßiger Anordnung und neigen beim Tempern schneller zur Aggregation, wenn sie langsam aufgewachsen sind. Diese Unterschiede sind aber nicht sehr groß. In *kompakten Schichten* dagegen, bei denen sich schon während des Kondensationsvorgangs größere Kristalle bilden, macht sich ein stärkerer Einfluß der Wachstumsgeschwindigkeit auf die Kristallgröße bemerkbar. Besonders auffällige Unterschiede wurden an Silberschichten auf Siliziummonoxydunterlage festgestellt. Wie in Fig. 5 zu erkennen ist, treten hier in Aufdampfschichten von 300 Å Dicke nach schneller Verdampfung einzelne Kristall-Lamellen** einer Flächenausdehnung von mehr als $(10^4 \text{ Å})^2$ auf, während in langsam aufgedampften Schichten gleicher Dicke die größten Kristalle eine Ausdehnung von $(2 \cdot 10^3 \text{ Å})^2$ besitzen. Unter der Einwirkung intensiver

* Die Erhöhung der Wachstumsgeschwindigkeit erfolgte also durch stärkere Heizung der Verdampfungsquelle. Damit nimmt die Geschwindigkeit der auf fallenden Atome ebenfalls zu. Der spezifische Einfluß der atomaren Geschwindigkeit wurde von LEVINSTEIN I. c.² und R. A. AZIZ und G. D. SCOTT, Canad. J. Phys. **34**, 731 (1956) und **35**, 985 (1957) untersucht.

** Ihre Dicke dürfte nicht sehr von der mittleren Schichtdicke abweichen. Solche Kristalle wurden gelegentlich auch auf Kohle, nicht aber auf Kollodium beobachtet.

Elektronenbestrahlung, also vor allem bei der elektronenmikroskopischen Beobachtung, verbiegen sich die großen Lamellen irreversibel* und bilden Wölbungen, die im Elektronenbild zu Bragg'schen Interferenzen dreizähliger Symmetrie Anlaß geben¹³ (Fig. 5 a). Hieraus kann geschlossen werden, daß diese Kristalle mit der Oktaederebene, also der Ebene ihrer dichtesten Besetzung, auf der Unterlage aufgewachsen sind.

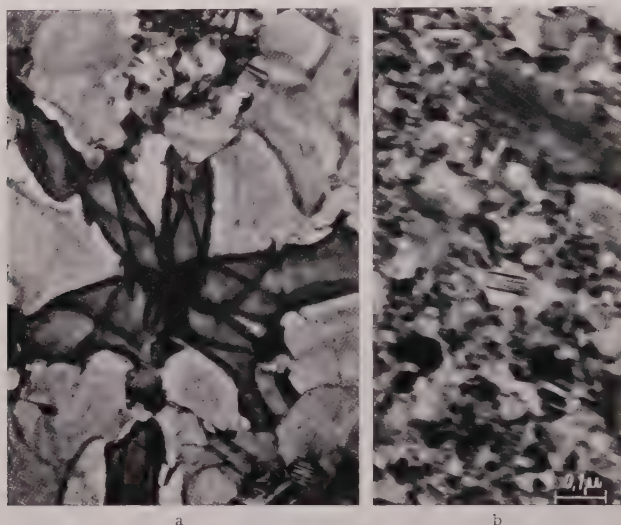


Fig. 5 a u. b. Strukturunterschiede in 300 Å dicken Silberschichten auf SiO₂-Unterlage durch verschiedene Aufdampfzeit. a In 4 Sekunden aufgedampft, Vakuum $5 \cdot 10^{-6}$ Torr; b in 5 Minuten aufgedampft, Vakuum $1 \cdot 10^{-6}$ Torr. In Teilbild 5 a nimmt eine riesige Kristall-Lamelle mit dreizähligem Interferenzstern fast den ganzen wiedergegebenen Ausschnitt ein

Beim Tempern der Schichten macht sich eine merkliche Sammelkristallisation, vor allem der kleineren Kristalle, bemerkbar. Tritt schließlich bei höheren Temperaturen das Zusammenlaufen der Schicht ein, dann widerstehen die Kristall-Lamellen dem Auflösungsprozeß am längsten. Während die kleinen Kristalle zu Partikeln unregelmäßiger Gestalt aggregieren (Fig. 6b), geschieht bei den Lamellen der Abbau unter Aufrechterhaltung gerader Randstücke, die in regelmäßigen Winkeln von 120° zu einander liegen (Fig. 6a). Erst bei sehr hohen Temperaturen gehen die regelmäßigen Berandungen dieser Kristalle verloren.

In den Elektronenbeugungsdiagrammen der kompakten Silberschichten war stets innerhalb des (111)-Ring ein Beugungsring sehr

* Beim Tempern dagegen nur in Ausnahmefällen. Zum Teil hindert daran das frühzeitige Aufreißen der Schicht, das im Elektronenmikroskop durch die Bedeckungen aufgehalten wird.

¹³ HANSZEN, K.-J.: Z. Ver. dtsh. Ing. 98, 1706 (1956).

geringer Intensität erkennbar, der nicht zum kubisch-flächenzentrierten Gitter dieses Metalls gehört und in Übereinstimmung mit KÖNIG¹⁴ als der (100)-Ring der hexagonalen Phase identifiziert wurde. Wie die Elektronenbeugungsaufnahmen weiter belegen, verschwindet der hexagonale Ring, sobald die Schichten vollständig aggregieren.

Durch Variation des Restgasdruckes im Vakuumgefäß zwischen $1 \cdot 10^{-6}$ und $1 \cdot 10^{-3}$ Torr ergab sich, daß schlechtes Vakuum denselben Einfluß wie langsame Verdampfung, gutes Vakuum wie schnelle Verdampfung ausübt.



Fig. 6a u. b. Strukturunterschiede in 160 Å dicken Silberschichten auf SiO₂-Unterlage nach Tempern auf 250 °C. a In 5 Sekunden aufgedampft, Vakuum $4 \cdot 10^{-5}$ Torr; b in 2½ Minuten aufgedampft, Vakuum $5 \cdot 10^{-5}$ Torr

Deutung der experimentellen Befunde. Nachdem festgestellt werden konnte, daß Schmelz- und Sublimationserscheinungen sowie, abgesehen von extrem dünnen Schichten, Oberflächendiffusionseffekte nicht als Ursache für die mitgeteilten Veränderungen geltend gemacht werden können, soll nun untersucht werden, wie weit die vorgefundenen Effekte durch die Einwirkung von Fremdschichten erklärt werden können.

Es muß zunächst in Betracht gezogen werden, daß die Kondensationsfläche schon dann mit nennenswerten Fremdschichten belegt ist, wenn sie nach ihrer Herstellung nur kurze Zeit im Vakuum gelagert hat. Denn bei einem Restdruck von 10^{-5} Torr im Hochvakuumgefäß wird jede Molekel der Kondensationsfläche etwa sekundlich von einer Kohlenwasserstoff- oder Wassermolekel der Restgase getroffen. Nimmt man an, daß nur ein geringer Bruchteil der auffallenden Molekel adsorbiert werden, so genügt das, die Oberfläche in kurzer Zeit mit einer Fremdschicht zu bedecken, welche die Kondensationsbedingungen wesentlich

¹⁴ KÖNIG, H.: Phys. Verh., Mosbach **8**, 33, 240 (1957).

verändern kann. Entfernt man diese Adsorptionsschicht durch Tempern, so muß man, wie aus Kondensationsversuchen bei hohen Temperaturen hervorgeht, nach dem Abkühlen mit ihrem erneuten Auftreten rechnen. Auf den Einfluß von adsorbierten Fremdschichten auf der Unterlage, vor allem auf den Einfluß von Sauerstoffbeladungen hat KÖNIG¹⁵ schon früher hingewiesen. Er macht sie für die große Beweglichkeit des aufgedampften Metalls auf der Unterlage verantwortlich. Es ist anzunehmen, daß Siliziummonoxyd praktisch immer mit dünnen Adsorptionsschichten überzogen ist und daß diese für die hohe Aggregationsfähigkeit der Aufdampfschichten auf dieser Unterlage verantwortlich sind. So wurden z. B. die Aufwölbungen der Kristall-Lamellen in Fig. 5a und 6a, welche allerdings auch auf frisch hergestellten Folien, die nicht mit Luft in Berührung gekommen waren, beobachtet werden konnten, von KÖNIG¹⁶ darauf zurückgeführt, daß eine vor der Bedampfung auf der Unterlage adsorbierte Wasserhaut unter Elektronenbestrahlung Dampfblasen zwischen Trägerfolie und Silberschicht bildet.

Ebenso wie die Kondensationsflächen werden sich auch die Metallschichten nach ihrer Herstellung spontan mit Adsorptionsschichten überziehen¹⁷. Außerdem kann während des Aufdampfprozesses selbst eine beträchtliche Anzahl der auffallenden Restgasmolekel in die Schicht eingebaut werden und dort zu Fehlern im Kristallaufbau führen. Auf Grund dieser Vorstellungen läßt sich sowohl die beobachtete Abhängigkeit der Strukturunregelmäßigkeiten von Wachstumsgeschwindigkeit und Restdruck, als auch die beim Tempern auftretende Sammelkristallisation, die mit einer Herausdrängung der Fremdmolekel aus dem Innern der Partikel an ihre Oberfläche verbunden sein dürfte, zwanglos erklären. Auch die beim Tempern beobachteten Oberflächenveränderungen können als eine Folge der Gasbeladungen angesehen werden. Es ist

¹⁵ KÖNIG, H., u. HELWIG: Z. Physik **129**, 491 (1951). — KÖNIG, H., u. M. KNOCH: Phys. Verh., Mosbach **2**, 76 (1951).

¹⁶ Diskussionsbemerkung auf der Tagung der Deutschen Gesellschaft für Elektronenmikroskopie in Münster (Westf.) am 31. 3. 1955.

¹⁷ Hierauf weist auch die Tatsache hin, daß das interferometrische Dickenmeßverfahren⁷ für lückenhafte Schichten stets zu große Dickenwerte liefert, wie aus Abweichungen von der aus der Geometrie der Verdampfungsanordnung zu erschließenden Proportionalität von Schichtdicke und Quadrat des reziproken Abstands Verdampfungsquelle = Kondensationsfläche geschlossen werden kann. Es liegt nahe, den Grund für diese Abweichungen darin zu suchen, daß der in diesem Verfahren zur Vermeidung von Phasensprüngen nachträglich auf die zu untersuchende Schicht niedergeschlagene Silberteppich durch die Adsorptionsfilme auf der Aufdampfschicht behindert wird, in deren Lücken einzudringen. Die erwähnten Unstimmigkeiten treten auch dann auf, wenn die Herstellung des Silberteppichs unmittelbar nach der Kondensation der Aufdampfschicht im gleichen Vakuum erfolgt; vgl. M. DÜHMKE u. K.-J. HANSZEN, Wiss. Abh. d. PTB **6**, Teil 1, (1954), S. 10.

bekannt¹⁸, daß die FremdadSORPTION an Kristallen mit einer starken Herabsetzung der spezifischen Oberflächenenergie verbunden ist.

Diese Tatsache macht es verständlich, daß in den untersuchten Aufdampfschichten die Bindungskräfte zwischen den Metallatomen an der Oberfläche einerseits und denen im Kristallgitter andererseits so gelockert und die Beweglichkeit der Oberflächenatome so erhöht wird, daß schon bei geringen Temperaturerhöhungen eine Abrundung der Teilchen beginnt und damit die beschriebene Aggregation in Gang kommt. Ebenso können die Fremdschichten wenigstens teilweise für die „tröpfchenartigen“ Oberflächenbegrenzungen der nach dem Tempern im Innern recht regelmäßig kristallinen Teilchen verantwortlich gemacht werden.

Veränderungen durch Tempern oberhalb 700 °C

Das Erscheinungsbild ändert sich völlig beim Erhitzen des Silbers über 700 °C. Jetzt beginnt eine mit wachsender Temperatur fortschreitende Abnahme der Teilchendurchmesser, die schließlich zum vollständigen Verschwinden der Silberpartikel führt. Wie die Berechnungen lehren, spielt in diesem Temperaturbereich bereits die Sublimation des Silbers eine merkliche Rolle: von nicht verunreinigten Teilchenoberflächen verdampft z. B. bei 700 °C schon etwa sekundlich eine Atomlage. Wenn der Einfluß der vorhandenen Fremdschichten auch eine quantitative Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment ausschließt, so bietet die mitgeteilte Zahlenangabe doch einen eindeutigen Hinweis dafür, daß der nach den kurzen Erhitzungszeiten beobachtete Substanzverlust durch mittelbare oder unmittelbare Verdampfung eingetreten ist.

Besonders auffällig ist es aber, daß die Schichten extrem dünne Rückstände hinterlassen (Fig. 7). Wegen der geringen Temperaturbeständigkeit der Silberverbindungen kann es sich hierbei kaum um verbleibende chemische Reaktionsprodukte des Silbers handeln. Die gleichen Rückstände treten auch nach dem Tempern von Gold auf. Wegen des niedrigeren Dampfdrucks dieses Metalls sind aber höhere Erhitzungen zu ihrem Nachweis erforderlich.

Während bei Silber und Gold die Rückstände sowohl auf Siliziummonoxyd- wie auch auf Kohleunterlage beobachtet wurden, fanden sie sich nach dem Tempern von Kupferaufdampfschichten nur auf Kohle-

¹⁸ Nach Untersuchungen von O. KNACKE u. I. N. STRANSKI [Z. Elektrochem. **60**, 816 (1956)] an makroskopischen Kristallen ist diese Erniedrigung so groß, daß sie zu neuen Trachten, also zu neuen Gleichgewichtsformen führen kann. Andere Veränderungen chemischer und physikalischer Eigenschaften, die ihre Ursache im gleichen Umstand haben, wurden von H. FORESTIER u. Mitarb. C. R. Acad. Sci. Paris **237 ff.** (1953 ff.) beschrieben. Vgl. auch H. FORESTIER u. Mitarb., in Pulvermetallurgie, Vorträge auf dem 1. Planseeseminar, Wien 1953, S. 8.

folien, da die Siliziummonoxyd-Träger bei hohen Temperaturen mit den Kupferpartikeln unter Löcherbildung reagierten.

Deutung der experimentellen Befunde. Die Rückstände treten auch dann auf, wenn die Metalle auf frisch hergestellten Siliziummonoxyd-



Fig. 7. Struktur einer 100 Å dicken Silberschicht (Aufdampfzeit 2 Minuten, Unterlage SiO) nach einer Erhitzung auf etwa 310 °C, die unmittelbar im Anschluß an die Kondensation der Schicht im gleichen Vakuumgefäß durchgeführt wurde (Vakuum bei der Verdampfung $5 \cdot 10^{-8}$ Torr, beim Erreichen der Maximaltemperatur $3 \cdot 10^{-4}$ Torr). Sehr schnell aufgedampfte Silberschichten zeigen weniger kontrastreiche Rückstände

Folien im gleichen Vakuum kondensiert und anschließend getempert wurden, ohne mit Luft in Berührung gekommen zu sein. Es kann sich daher bei den zurückgebliebenen Hüllen nur um die Reste von Fremdbedeckungen handeln, die während des Kondensationsvorgangs oder der anschließenden Lagerung im Hochvakuum auf die Oberflächen der Aggregate gelangt sind, also um die Reste der Oberflächenfilme, deren Mitwirkung an den beobachteten Metall-Aggregationen in den vorangegangenen Ausführungen beschrieben wurde.

Auffällig ist es, daß die Überreste dieser Deckschichten oberhalb 700 °C überhaupt noch existenzfähig sind. Es ist schwer verständlich, daß Oberflächenfilme, die mit ihren umgebenden Dämpfen im Adsorptionsgleichgewicht stehen, bei diesen Temperaturen noch in merklichem Maße vorhanden sind.

Zur Deutung der vorgefundenen Erscheinungen darf daher angenommen werden, daß während des Temperns in den Fremdschichten Umlagerungen zu resistenteren Verbindungen stattfinden, gegebenenfalls Reduktionen zu reiner Kohle.

Schichten mit nachträglich aufgebraachten Bedeckungen aus Kohlenwasserstoff-Polymerisaten oder Kohle

Veränderungen durch Tempern bis 700 °C

Wie schon früher mitgeteilt⁹, führen künstlich auf die Metallschichten niedergeschlagene Fremdbedeckungen beim Tempern zu neuartigen Veränderungen in der Aufdampfschicht. Als Bedeckungen dieser Art müssen an erster Stelle die bereits erwähnten Hüllen aus Kohlenwasserstoff-Polymerisaten genannt werden, die unter dem Elektronenstrahl auf den Präparaten aufwachsen und in ihrer Zusammensetzung von den spontanen Adsorptionsschichten verschieden sind. Ihre Dicke

dürfte bei den untersuchten Präparaten nach vorsichtigen Schätzungen unter Zugrundelegung der Angaben von LEISEGANG und SCHOTT¹⁹ mindestens 100 Å betragen. Sie liegt um etwa eine Größenordnung höher als die der Adsorptionsschichten und ist im allgemeinen mit der Dicke der Aufdampfschicht selbst vergleichbar. Auch auf die Metallschichten aufgedampfte Kohle- und - in geringerem Maße auch - Siliziummonoxyd-Bedeckungen von 50 bis 250 Å Dicke besitzen ähnliche Wirkungen wie die vorgenannten Deckschichten. Die benutzten Unterlagen,

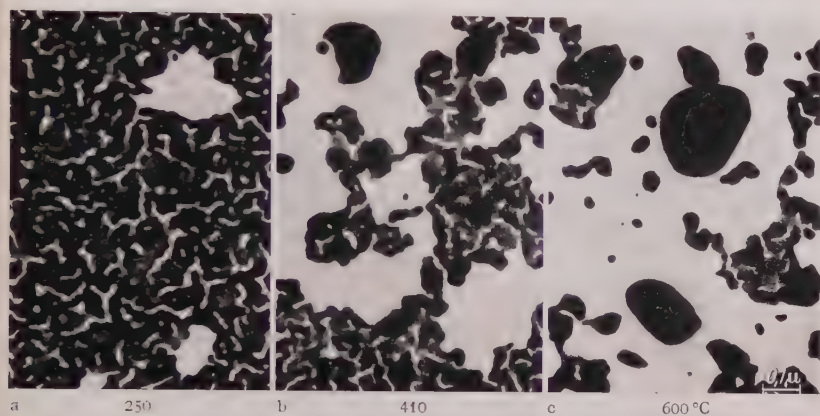


Fig. 8 a—c. Im Elektronenstrahl mit Kohlenwasserstoff-Polymerisaten bedeckte, 100 Å dicke Silberschichten (Aufdampfzeit 2 Minuten, Vakuum $5 \cdot 10^{-6}$ Torr, Unterlage SiO) nach Erhitzen auf die unter den Teilbildern angegebenen Temperaturen

ob Kollodium, Siliziummonoxyd oder Kohle, haben ebenso wie die Wachstumsgeschwindigkeit keinen nennenswerten Einfluß auf die hier zu besprechenden Effekte, die auf einer direkten Wechselwirkung zwischen Aufdampfschicht, spontaner und künstlicher Bedeckung beruhen.

Bei Silber geht zunächst ein *konservierender Einfluß* von den künstlichen Bedeckungen auf die Aufdampfschicht aus. So bleiben nach Fig. 8a die ursprünglichen Risse in einer Silberschicht beim Tempern bis 250 °C fast unverändert erhalten. Die *Aggregation** der Schicht tritt daher erst entsprechend später ein und führt zu weniger zahlreichen, dafür aber bedeutend größeren Konglomeraten (Fig. 8c). Das ist verständlich, da die Zahl der Stellen, an denen ein Aufreißen der Schicht möglich ist, durch die mechanische Schutzwirkung der aufgetragenen Bedeckungen stark herabgesetzt wird.

* Schichten auf Kohle neigen stärker zur Aggregation als solche auf Siliziummonoxyd. Geringere Sorgfalt bei der Präparation der Schichten führt auch auf Siliziummonoxyd zu einer Begünstigung der Aggregation gegenüber der Aufzehrung.

¹⁹ LEISEGANG, S., u. O. SCHOTT: in *Electron Microscopy*, Proc. Stockholm Conf., Sept. 1956. Stockholm 1957, S. 20.

Das eigentlich Interessante geschieht aber vor Eintritt der Aggregation, also im Temperaturbereich zwischen 250 und 400 °C. Hier beginnt

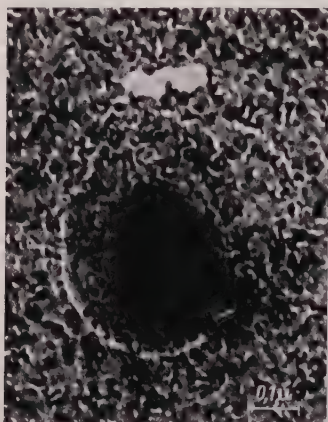


Fig. 9. Erste Veränderungen an einer verunreinigten Stelle in einer 80 Å dicken Wismutschicht (Aufdampfzeit 1 Minute, Vakuum $1 \cdot 10^{-4}$ Torr, Unterlage SiO) nach Tempern auf 205 °C

an einigen Stellen der Schicht eine *Aufzehrung* (Fig. 8b) die in den meisten Fällen nicht mit einer beobachtbaren Anlagerung des verlorengegangenen Materials an anderen Stellen der Schicht verbunden ist. Die in den Rissen der Aufdampfschicht abgelagerten Bedeckungen bleiben dabei erhalten und zeichnen sich in den aufgezehrten Schichtbereichen als dunkle Linien auf der Unterlage ab. Ähnliche Erscheinungen wurden in geringerem Maße auch an Goldschichten festgestellt. Wenn auch die Schutzwirkung der Bedeckungen bei diesem Metall nicht so ausgeprägt ist, daß sich klar zwischen den Stadien des Konservierens, der Aufzehrung und der Aggregation unterscheiden läßt, so heben sich doch auch

hier die an künstlich bedeckten Schichten beobachteten Erscheinungen deutlich von denen an unbedeckten Schichten ab.

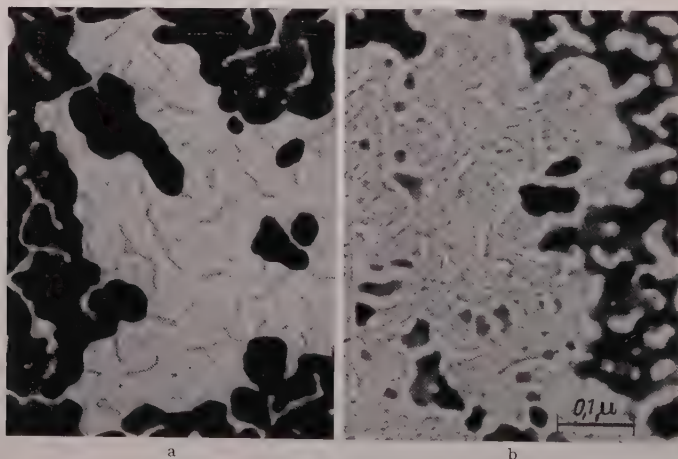


Fig. 10a u. b. Gegenüberstellung der nach Tempern auf 440 °C verbleibenden Rückstände; a einer mit Kohlenwasserstoff-Polymerisaten bedeckten Silberschicht; b einer Wismutschicht. Beim Silber zeichnen sich die Reste der künstlich aufgetragenen Bedeckungen als dunkle Linien an den Stellen der ursprünglichen Risse ab. Da diese Bedeckungen beim Wismut fehlten, bleiben hier die Rißstellen hell. Dagegen weisen die ursprünglich mit Wismut bedeckten Stellen zurückbleibende Reste körniger Struktur auf, die vermutlich von Reaktionsprodukten des Wismut herrühren

Im Gegensatz zu Silber und Gold sind bei Wismut keine künstlichen Fremdschichten notwendig, um die Aufzehrung der Schichten einzu-

leiten. Sie beginnt hier zum Teil an verunreinigten Objektstellen (Fig. 9) und führt, wie bei Silber, zu riesigen Lückenbildungen in der Schicht (Fig. 10). Die verbliebenen Rückstände, deren Zusammensetzung nicht aufgeklärt werden konnte, machen es deutlich, daß die Oberflächen dieser Schicht schon von sich aus erheblich mit Fremdstoffen beladen waren.

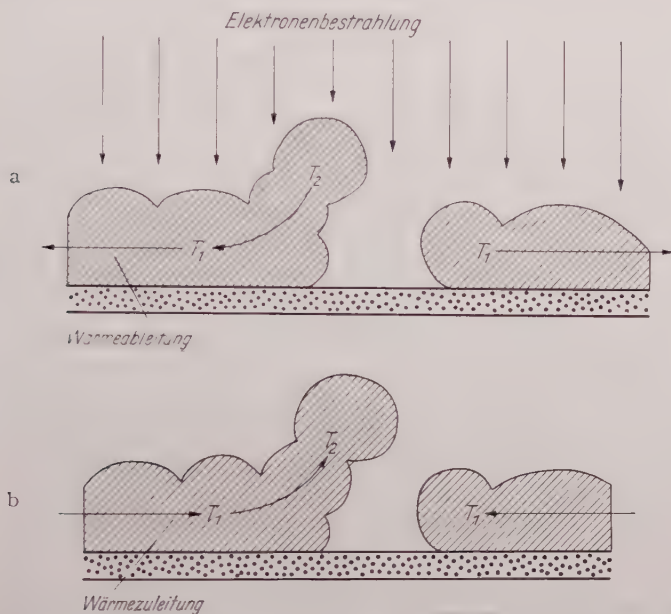


Fig. 11a u. b. Wärmeerzeugung und -ableitung in der Aufdampfschicht. a Im Elektronenmikroskop. Hier erfolgt die Aufheizung durch Energieübertragung von den Strahlelektronen an die durchstrahlte Materie, die Wärmeabgabe durch Wärmestrahlung und -leitung an die Umgebung. Temperaturdifferenzen $T_2 - T_1$ im Objekt können auch im stationären Zustand durch unterschiedliche Energieaufnahme, Wärmestrahlung oder -leitung aufrecht erhalten werden. b Im Vakuumofen. Hier erfolgt die Aufheizung durch Wärmestrahlung und Wärmeleitung. Temperaturdifferenzen sind im Objekt, soweit dieses im Innern des Ofens liegt, nur bis zur Erreichung des thermischen Gleichgewichts möglich und allein durch unterschiedliche Wärmestrahlung und -leitung bestimmt. Beide üben aber den umgekehrten Einfluß wie im Elektronenmikroskop aus. Insbesondere können Temperaturunterschiede im Objekt durch gestörte Wärmeleitfähigkeit in beiden Fällen nicht das gleiche Vorzeichen besitzen

Deutung der experimentellen Befunde. Lückenbildungen durch Aufzehrung wurden erstmalig von BRYANT und Mitarbeitern²⁰ an Wismut bei der Erhitzung durch *Elektronenbestrahlung* im Elektronenmikroskop beobachtet. Sie führten diese Erscheinung auf eine Verdampfung des Metalls an Stellen erhöhter Temperatur durch gestörte Wärmeableitung zurück (Fig. 11a). Daß diese Deutung für unsere Versuche jedoch auszuschließen ist, folgt aus der Tatsache, daß nach Fig. 11b die Wärmeleitung im *Vakuumofen*, soweit sie im Vergleich zur Wärme-

²⁰ BRYANT, P. J., H. U. RHODS u. A. H. WEBER: J. Appl. Phys. **25**, 1343 (1954).

strahlung überhaupt eine nennenswerte Rolle spielt, höchstens die umgekehrte Wirkung haben kann.

Darüber hinaus lehrt eine nähere Beschäftigung mit den Wärmeübertragungsverhältnissen im Ofen, daß sich die elektronenmikroskopischen Präparate wegen ihrer außerordentlich geringen Wärmekapazität selbst bei schnellstem Temperaturanstieg praktisch momentan auf die Ofentemperatur einstellen und nennenswerte Temperaturgradienten in den Präparaten nicht zu erwarten sind.

Nach den früheren Ausführungen ist der Dampfdruck des Silbers und Goldes bei den hier in Betracht kommenden Temperaturen für die vorliegenden Teilchengrößen so gering, daß eine Sublimation des reinen Metalls zur Erklärung der beobachteten Erscheinungen ebenfalls nicht herangezogen werden kann. Insbesondere muß ausgeschlossen werden, daß es sich um einen Vorgang handelt, der unabhängig von dem Vorhandensein der Deckschichten auftritt und durch deren Schutzwirkung nur auf wenige Fehlstellen in den Bedeckungen beschränkt bleibt, da diese Annahmen im Widerspruch zu der Erfahrung stehen, daß bei Schichten ohne künstliche Bedeckungen ein beobachtbarer Substanzverlust erst bei viel höheren Temperaturen eintritt.

Es muß vielmehr angenommen werden, daß die aufgetragenen Bedeckungen aktiv an den Veränderungen in den Metallschichten beteiligt sind. Nach früheren Feststellungen²¹ tritt der Substanzverlust durch die von wenigen Stellen der Schicht ausgehende Aufzehrung ein, wenn keine völlig geschlossenen Bedeckungen vorliegen und die in Fig. 11 dargestellten Strukturelemente nur schneehäubchenartig bedeckt sind. Die große Oberflächenbeweglichkeit der aufgetragenen Fremdmolekeln ermöglicht es diesen, auch in die nicht direkt beaufschlagten Gebiete, vornehmlich also unter die Risse in *dünnster Belegung* vorzudringen und dort die Oberflächenwirkungen der bereits vorhandenen Adsorptionsschichten wesentlich zu erhöhen. Daß ihre Wirkung an diesen Stellen zu einer Aufzehrung der Metallschicht führen kann, läßt sich für den Fall anschaulich erklären, daß der Oberflächenfilm mit dem Metall unter Bildung leicht sublimierbarer Oberflächenverbindungen reagiert. Dampfen diese nämlich beim Tempern ab — gegebenenfalls unter eigenem Zerfall — so bedecken sich die freigewordenen Metalloberflächen sofort wieder mit erneut von den Deckschichten zuwanderndem Fremdmaterial. Der Vorgang iteriert also unter gleichzeitigem Materieschwund in der Aufdampfschicht *und* der Deckschicht. Daß auch die Bedeckung in Mitleidenschaft gezogen wird, zeigt der

²¹ HANSZEN, K.-J. in Electron Microscopy, Proc. Stockholm Conf., Sept. 1956, Stockholm 1957, S. 79. Leider enthält diese Mitteilung durch einige, ohne Zustimmung des Verfassers vorgenommene redaktionelle Eingriffe einige Mißverständlichkeiten, die im wesentlichen in den Darlegungen dieser Arbeit richtiggestellt sind.

elektronenmikroskopische Befund: In Fig. 8 und 10a sieht es so aus, als ob die Bedeckungen nur auf den freien Stellen der Unterlage, nicht aber auf den Oberflächen der Schicht stehengeblieben sind. Zumindest haben sie nach dem Verschwinden der eingeschlossenen Metallteilchen so an Kontrast verloren, daß „Hüllabdrücke“ der zerklüfteten Oberflächenstruktur nicht beobachtet werden konnten. Eine endgültige Entscheidung dieser Frage vermögen aber erst die Untersuchungen des nächsten Abschnitts zu geben.

Daß zur Aufzehrung des Wismuts schon die spontanen Adsorptionsschichten oder zufällig vorhandene Verunreinigungen ausreichen, erklärt sich nach obigem durch den unedleren Charakter dieses Metalls und seine um viele Zehnerpotenzen höhere Verdampfungsgeschwindigkeit.

Es ist anzunehmen, daß durch die künstlichen Bedeckungen auch die Oberflächendiffusion des Metalls längs der Unterlage gefördert wird und bei der Aggregation der Schicht zu großen Klumpen neben dem besprochenen Zusammenlaufen eine wesentliche Rolle spielt. Nähere Aussagen hierüber sind mit elektronenmikroskopischen Mitteln leider nicht möglich, da unter den jetzt realisierbaren Verhältnissen die Beobachtung des zeitlichen Fortschreitens dieser Veränderungen am gleichen Präparat nicht ohne zusätzliche Beeinflussung (ungleiche Aufheizung der großen und kleinen Teilchen, laufende Abscheidung von Fremdmaterial) durchführbar ist.

Veränderungen durch Tempern über 700 °C

Führt man die Erhitzungen bis zu den Temperaturen weiter, bei denen eine merkliche Verdampfung des Silbers unter dem eigenen Dampfdruck beginnt, dann können im elektronenmikroskopischen Bild nach Fig. 12 drei Objektbereiche ungleicher Struktur von einander unterschieden werden:

Bereich A. Die Rißstellen in der ursprünglichen Schicht zeichnen sich durch die stehengebliebenen Bedeckungen scharf ab; der Untergrund erscheint sehr hell.

Bereich B. Die Risse sind weniger scharf gezeichnet; der Untergrund erscheint etwas dunkler.

Bereich C. Die Risse sind nur noch sehr schwach zu erkennen; der Untergrund erscheint dunkel.

Beim Vergleich zahlreicher Aufnahmen kann man feststellen, daß sämtliche Übergänge zwischen diesen Merkmalen anzutreffen sind. Auf dem gleichen Präparat sind die einzelnen Bereiche, soweit sie direkt aneinandergrenzen, gewöhnlich durch kontrastreiche zusammenhängende Linien voneinander getrennt (die Grenzlinie zwischen A und B in Fig. 12 ist durch Pfeile markiert).

Deutung der experimentellen Befunde. Wir möchten die im Bereich C verbliebenen Rückstände als die vollständig erhalten gebliebenen Bedeckungen ansehen. Wir nehmen an, daß die Sublimation in diesem Bereich erst bei so hohen Temperaturen in Gang gekommen und unter dem eigenen Dampfdruck so schnell abgelaufen ist, daß die Fremdstoffnachlieferung von den Bedeckungen auf die sublimierenden Metalloberflächen wegen der Langsamkeit dieses Vorgangs oder wegen der Umwandlung der Bedeckungen in Verbindungen mit geringerer Neigung

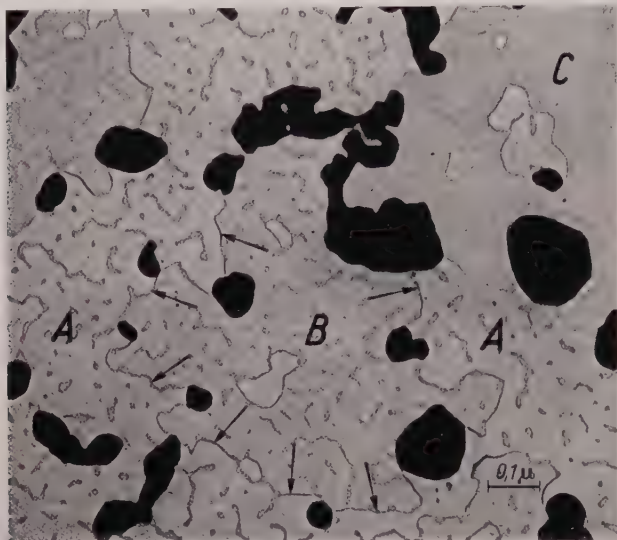


Fig. 12. Unter den in Fig. 8 angegebenen Bedingungen hergestellte Silberschicht nach Tempern auf etwa 775 °C

zur Oberflächendiffusion keine Rolle mehr gespielt hat. Ebenso nehmen wir an, daß die Aufzehrung im Bereich B bei höheren Temperaturen als im Bereich A begonnen hat, so daß hier die Nachlieferung der Fremdstoffe, und damit der Abbau der Hüllensubstanz in geringerem Maße als bei A, aber in stärkerem Maße als bei C erfolgte. Interessant ist der Übergang zwischen B und C in der linken oberen Ecke von Fig. 12. Für die vorgenommene Zuordnung von Untergrundstruktur und Temperatur des Beginns der Aufzehrungen spricht die Tatsache, daß Kontrastunterschiede wie in A und B schon bei niedrigeren Erhitzungen in noch nicht aneinandergrenzenden Bereichen auf der gleichen Photoplatte beobachtet wurden, Strukturen nach C dagegen nur bei hohen Erhitzungen. Das während der Aufzehrung über das Metall mitwandernde Fremdmaterial wird, soweit es nicht mitverdampft, an den Stellen abgeschieden, an denen die Aufzehrung durch Aneinandergrenzung der einzelnen

Bereiche zum Stillstand kommt. Es bildet dort die erwähnten zusammenhängenden Linien.

Aller Wahrscheinlichkeit nach haben sich auch in A die Hüllen noch nicht völlig aufgelöst. In Profilaufnahmen der Präparate, die an zusammengerollten Folien gelegentlich gelingen, waren jedenfalls zum Teil noch leere Hüllen zu erkennen. Es ist aber anzunehmen, daß die verbliebenen Reste einen starken Materialschwund erlitten haben. Ihre Elektronenstreuung ist dadurch bedeutend geringer als die der Unterlage geworden, so daß sie sich von dieser in der elektronenmikroskopischen Aufnahme in Daraufricht nicht mehr mit genügendem Kontrast abheben.

Fig. 13. Reste einer 100 Å dicken Silberschicht (Aufdampfzeit 3 Minuten, Vakuum $2 \cdot 10^{-5}$ Torr, Unterlage SiO), nach fast vollständiger Verdampfung im Elektronenstrahl. Folgende Bestrahlungsbedingungen wurden eingehalten: Strahldichte am Objektort etwa 3 Å/cm^2 unter maximaler Ausleuchtung mit dem Kondensor und entsprechender Wehnelt-Vorspannung (beide in einem Vorversuch eingestellt); plötzliche Freigabe des Strahls auf den Bohrungsrand der Präparatblende (Objektisch vorher entsprechend eingestellt) durch Einschalten der Heizspannung bei schon angelegter Beschleunigungsspannung; anschließende Verschiebung des Präparats in den Strahlkegel



Sehr deutlich ist der Schwund der Bedeckungen bei der Aufzehrung von Präparaten unter der Einwirkung des *Elektronenstrahls* zu erkennen. Nähere Einzelheiten hierüber werden in Kürze in einer gesonderten Arbeit mitgeteilt. An dieser Stelle soll nur an Hand von Fig. 13 gezeigt werden, daß die im Elektronenstrahl zu den spontanen Fremdschichten zusätzlich aufwachsenden Bedeckungen unter geeigneten Bestrahlungsbedingungen nicht zu stärkeren, sondern zu schwächer erkennbaren Rückständen als die spontanen Adsorptionsschichten beim Vakuumtempern (Fig. 7) führen.

Schichten mit Oxydbedeckungen

Veränderungen an Schichten ohne zusätzliche Bedeckungen

Während Silberschichten mit Rißstruktur bereits unterhalb 100 °C beträchtliche Veränderungen erlitten haben, zeigten sich an *Kupferaufdampfschichten* des gleichen Aussehens bis etwa 350 °C keinerlei Veränderungen (Fig. 14a). Erst etwa bei 400 °C begannen in den Kupferschichten fast gleichzeitig Lückenbildungen und Aggregationen, die mit Sammelkristallisationserscheinungen Hand in Hand gingen (Fig. 15a). Die Aggregation überwog hierbei aber so stark, daß nach Erhitzungen um weitere 100 Grad nur noch frei liegende Teilchen vorhanden waren.

Die Elektronenbeugungsaufnahmen der ungetemperten Schichten wiesen neben dem Kupferdiagramm stets mit schwacher Intensität den (111)-Ring des Kupferoxyduls auf. In aggregierten Schichten war er

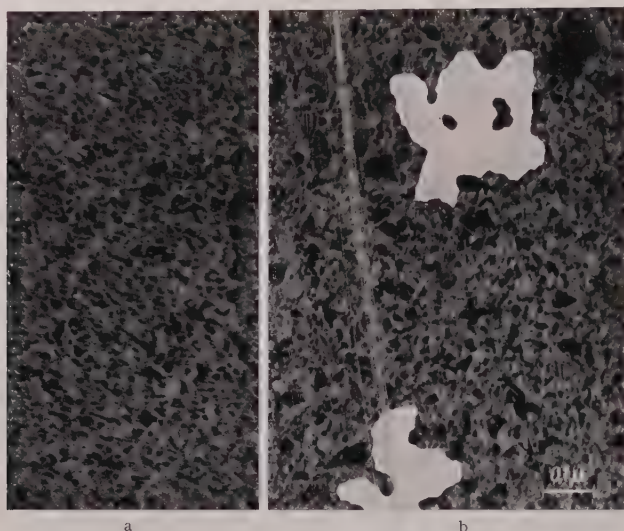


Fig. 14 a u. b. Strukturunterschiede in 150 Å dicken Kupferschichten (Aufdampfzeit 3 Minuten, Vakuum $1,5 \cdot 10^{-8}$ Torr, Unterlage SiO) nach Tempern auf 320 °C. a Ohne künstliche Bedeckungen; b nachträglich mit einer etwa 150 Å dicken Kohleschicht bedampft

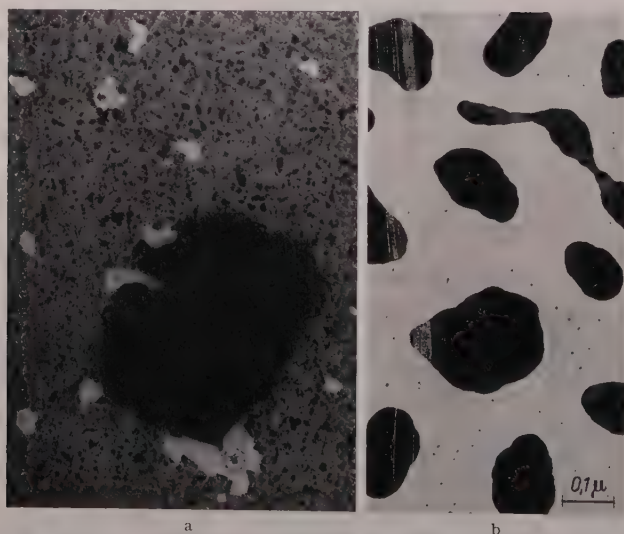


Fig. 15 a u. b. Strukturunterschiede in 100 Å dicken Kupferschichten (Aufdampfzeit 4 Sekunden, Vakuum $3 \cdot 10^{-8}$ Torr, Unterlage SiO) nach Tempern auf 400 °C. a Ohne künstliche Bedeckungen; b nachträglich durch Elektronenbestrahlung mit Kohlenwasserstoff-Polymerisaten bedeckt

jedoch nicht mehr feststellbar*. Die genaue Temperatur des Ausbleibens des Cu_2O -Rings konnte auf Grund seiner geringen Intensität nicht sicher festgelegt werden. Zur Ermittlung dieser Reduktionstemperatur wurden Untersuchungen an vollständig durchoxydierten Kupferschichten durchgeführt. Um den Ablauf der thermischen Zersetzungen nicht durch zu kurze Erhitzungszeiten abubrechen, wurden die jeweils beim Tempern eingestellten Maximaltemperaturen 1 Std lang aufrecht erhalten. Nach Ausweis der Beugungsdiagramme bestanden die durchoxydierten Proben anfänglich vollständig aus CuO ²². Die Umwandlung zu Cu_2O erfolgte schon unterhalb 300 °C, diejenige zu reinem Kupfer war bereits bei 370 °C abgeschlossen*. Wie aus den elektronenmikroskopischen Aufnahmen hervorgeht, war die letzte Reaktion mit großen Sammelkristallisationen im Präparat verbunden. Gleichzeitig setzte eine Aggregation des Kupfers ein, die wiederum bei 500 °C mit der Bildung abgerundeter Konglomerate beendet war.

Deutung der experimentellen Befunde. Das unterschiedliche Verhalten von Kupfer und Silber beim Tempern ist auf Grund der Kristalleigenschaften der beiden Metalle nicht erklärbar: Gitterenergie, Oberflächenenergie und Dampfdruck sind nur so wenig von einander verschieden, daß die beiden Metalle beim Tempern ein ähnlicheres Verhalten zeigen müßten. Sie unterscheiden sich aber stark in den spontanen Bedeckungen. Wegen der starken Affinität des Kupfers zum Sauerstoff ist unter den vorliegenden Vakuumverhältnissen bei diesem Metall eine Oberflächenoxydation nicht zu vermeiden. Es ist daher anzunehmen, daß die in den Beugungsaufnahmen nachgewiesenen Oxydulbedeckungen bis zu ihrer eigenen thermischen Zersetzung die Aufdampfschicht in ähnlicher Weise vor Aggregationen zu schützen vermögen, wie es bei Silber durch die künstlichen Bedeckungen der Fall war. Im Einklang hiermit steht die Beobachtung, daß bei den vorliegenden Vakuumverhältnissen die thermische Zersetzung des Oxyduls im selben Temperaturbereich wie die ersten Veränderungen der Kupferaufdampfschicht eintreten. In diesem Sinne ist die Feststellung von KEITH²³ zu deuten, daß bei

* Nach der Erhitzung auf Temperaturen, die weiter oberhalb der Gleichgewichtstemperatur zwischen Cu_2O und Cu lagen, traten wieder schwache Ringe von Cu_2O auf. Offenbar hatte beim Abkühlen im Ofen eine erneute Oxydation stattgefunden. Durch Erhitzen kurz über die Gleichgewichtstemperatur konnten die Oxydulringe wieder zum Verschwinden gebracht werden. Nach Tempern in einem Tiegel aus Sinterspinell, der in wenigen Minuten bereits vollständig abgekühlt war, traten sie von vornherein nicht auf.

²² Es handelte sich hierbei stets um das von J. M. COWLEY, J. Electrochem. Soc. **101**, 277 (1954), — J. appl. Phys. **27**, 422 (1956) u. R. D. HEIDENREICH u. K. H. STORKS, J. appl. Phys. **26**, 1056 (1955) beschriebene „Dreiringdiagramm“ des CuO .

²³ KEITH, H. D.: Vortrag auf dem Symposium on Thin Films, Reading, Sept. 1956. Vgl. den zusammenfassenden Bericht über diese Tagung in Brit. J. appl. Phys. **8**, 98 (1957).

tieften Temperaturen oxydfrei aufgedampfte Kupferschichten bei der Erwärmung auf Zimmertemperatur aggregieren, oxydierte Schichten dagegen nicht.

Nicht beantwortet werden kann dagegen die Frage, ob die Oxydulschichten bei ihrer thermischen Zersetzung die Veränderungen in der Kupferschicht begünstigen, wie es von den künstlichen Bedeckungen auf Silber gezeigt werden konnte. Bei makroskopischen Proben ist ein solcher Effekt bereits von ERDMANN-JESNITZER und GÜNTHER²⁴ diskutiert worden. Sie stellten zwischen 700 und 800 °C bei Anwesenheit von Oxydulbedeckungen eine erhöhte Verdampfung des Kupfers fest und erklärten diesen Vorgang durch eine Verdampfung der Oxydulschicht, die eine Reaktion der freigelegten Kupferoberfläche mit dem Restsauerstoff in der Apparatur und damit eine Iteration dieses Vorgangs unter Aufzehrung des Kupfers nach sich zieht. Dieser Reaktionsablauf ist nur dann möglich, wenn die Dampfdruckkurve des Oxyduls oberhalb seiner Dissoziationsdruckkurve liegt.

Eine kritische Sichtung der bekannt gewordenen Daten über die Gleichgewichtskurven des Kupfers und seiner Oxyde²⁵ führt jedoch zu dem Ergebnis, daß die aus diesen Werten errechnete Dampfdruckkurve des Kupferoxyduls nicht über seiner Dissoziationsdruckkurve liegen kann. Die benutzten Tabellenwerte sind nach dem heutigen Erfahrungsstand aber relativ unsicher, so daß eine endgültige Entscheidung dieser Frage einer experimentellen Bestimmung der beiden Kurven überlassen werden muß.

In unseren Temperungsversuchen der Kupferoxyde ist ein Verschwinden des Oxyduls zumindest nicht in erster Linie durch Sublimation, sondern durch Reduktion zu Kupfer verursacht. Auffällig ist hierbei, daß die thermische Zersetzung bei so niedrigen Temperaturen beginnt*. Man kann dieses Verhalten auch dann nicht mit den bekannten Daten der Dissoziationsdruckkurve in Übereinstimmung bringen, wenn man nach den Angaben von BLEARS⁶ mit einem um Zehnerpotenzen geringeren Sauerstoffpartialdruck als dem Restdruck in der

* *Anmerkung bei der Korrektur:* Interessant sind in diesem Zusammenhang die inzwischen mitgeteilten Untersuchungen von A. GOSWAMI u. Y. N. TREHAN, Proc. Phys. Soc. (B) **70**, 1005 (1957).

²⁴ ERDMANN-JESNITZER, F., u. F. GÜNTHER: Z. Metallk. **45**, 407 (1954).

²⁵ Dampfdruck von Cu: LANGMUIR, I., u. Mitarb.: Phys. Rev. **30**, 201 (1927). — Dampfdruck von CuO: MACK, E., u. Mitarb.: J. Amer. Chem. Soc. **45**, 622 (1923). — Sauerstoffpartialdruck des Gleichgewichts $\text{CuO} \rightleftharpoons \text{Cu}_2\text{O}$: SMYTH, F. H., u. H. S. ROBERTS: J. Amer. Chem. Soc. **42**, 2603 (1920). — Konstanten des Massenwirkungsgesetzes bei beiden Reduktionen aus den thermodynamischen Daten. Vgl. LANGE, W.: Die thermodynamischen Eigenschaften der Metalloxyde, S. 36f. Berlin 1949.

Vakuumanlage rechnet. Gegebenenfalls ist es die reduzierende Wirkung anderer Adsorptionsschichten, die für diese Unstimmigkeiten mit verantwortlich ist.

Veränderungen an Schichten mit künstlichen Bedeckungen

Bedeckt man die Kupferschichten vor dem Tempern mit Kohlenwasserstoff-Polymerisaten oder Kohle, so tritt auf Siliziummonoxydunterlage die an einigen wenigen Stellen der Schicht beginnende Aufzehrung des Kupfers bei bedeutend niedrigeren Temperaturen ein (Fig. 14b). Auch die Aggregation ist bei niedrigeren Temperaturen abgeschlossen (Fig. 15b). Auf Kohleunterlage verändern sich die Schichten ebenfalls schon bei tieferen Temperaturen. Hier folgen aber Aggregation und Sublimation so schnell aufeinander, daß beide Effekte nicht getrennt beobachtet werden konnten. Der Temperaturbereich, in dem die Lückenbildung allein auftritt, ist viel enger als bei Silber und kann bei weniger sorgfältiger Präparation ganz verschwinden.

Deutung der experimentellen Befunde. Durch Reaktion mit den zusätzlich aufgebrachten Bedeckungen kann die Reduktion der Oxydschicht, und damit auch die Veränderungen in der Kupferschicht zu niedrigeren Temperaturen hin verschoben werden. Anschließend vermag der Rest der an der Reaktion nicht beteiligten Bedeckung auf Kupfer ähnliche Wirkungen wie auf Silber auszuüben. Wir haben hier ein besonders instruktives Beispiel vor Augen, daß durch künstlich aufgebrachte Bedeckungen, besonders durch die im Elektronenmikroskop abgelagerten Umhüllungen, die temperaturbedingten Veränderungen in den Präparaten gefördert werden können.

Zusammenfassung

Bei den thermischen Veränderungen von metallischen Aufdampfschichten können Fremdschichten sehr verschiedenen Ursprungs auf mannigfache Weise beteiligt sein. Folgende Einwirkungsmöglichkeiten müssen berücksichtigt werden:

1. rein mechanische Schutzwirkung.
2. Erhöhung der Beweglichkeit der Metallatome a) auf den bedeckten Metalloberflächen (Aggregation), b) längs der Unterlage (Oberflächendiffusion).
3. Erhöhung der Verdampfungsgeschwindigkeit des Metalls durch Bildung leicht sublimierender oder sich wieder zersetzender Oberflächenverbindungen zwischen Fremdschicht und Metall.
4. Zusammenwirken mehrerer gleichzeitig vorliegender Bedeckungen und chemische Reaktionen zwischen diesen.

Die mitgeteilten Ergebnisse stützen sich auf ein umfangreiches elektronenmikroskopisches Beobachtungsmaterial, das unter Variation zahlreicher Versuchsparameter gewonnen wurde und durch simultan durchgeführte Beugungsaufnahmen ergänzt wurde. Soweit im Rahmen der angewandten Untersuchungsmethoden noch Fragen offen bleiben mußten, möchten die obigen Darlegungen zu ihrer weiteren Bearbeitung mit anderen Hilfsmitteln anregen.

Herrn BOKELMANN habe ich für die Sorgfalt und Gewissenhaftigkeit, mit der er mich bei der Präparation und den elektronenmikroskopischen Aufnahmen unterstützt hat, sehr zu danken.

Aus dem Institut für Technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Zeeman-Effekt und Analyse der Spektren des dreiwertigen Samariums in Einkristallen verschiedener Symmetrie*

Von

H. LÄMMERMANN

Mit 16 Figuren im Text

(Eingegangen am 22. Oktober 1957)

Die Absorptionsspektren des Sm^{+++} -Ions im Samariumäthylsulfat, Samariumchlorid und Samariumnitrat werden in polarisiertem Licht zwischen 4,2 und 80 °K mit hoher Dispersion und in äußeren Magnetfeldern verschiedener Größe und Richtung aufgenommen. Für den Grundterm und sieben angeregte Terme werden die Werte der Kristallquantenzahlen und die J -Werte angegeben. Im Äthylsulfat werden die g -Faktoren und im Chlorid die reziproken Aufspaltungsellipsoide von fünf Termen bestimmt. Der g -Faktor reagiert empfindlich auf die schwache Beimischung von Zuständen mit verschiedenen J -Werten im Kristallfeld. Bei einigen Termen sind die reziproken Aufspaltungsellipsoide zu Ebenenpaaren ausgeartet, woraus auf das Vorhandensein einer pseudohexagonalen Achse des Kristallfeldes senkrecht zur A_2^2 im Chlorid geschlossen wird.

I. Einleitung

Die Absorptionsspektren einiger kristalliner Samariumsalze sind bereits früher auf ihre Temperaturabhängigkeit hin untersucht worden¹⁻⁷. Eine Analyse konnte jedoch bei der oft zu kleinen Dispersion, ohne Verwendung von polarisiertem Licht und ohne Kenntnis des Zeeman-Effektes der Spektren bei den damaligen theoretischen Kenntnissen nicht gelingen. Seit einigen Jahren stehen nun die theoretischen Hilfsmittel für die Analyse der Absorptionsspektren kristalliner Salze der Seltenen Erden in einer für den Experimentator handlichen Form zur Verfügung^{8,9},

* Darmstädter Dissertation, D 17. Vorgetragen auf der Physikertagung in Bad Nauheim am 14. 4. 57.

¹ FREED, S., u. F.H. SPEDDING: Nature, Lond. **123**, 526 (1929). — Phys. Rev. **351**, 212 (1930).

² FREED, S., u. I.G. HARWELL: Proc. Acad. Sci. Amsterd. **35**, 979 (1932).

³ SPEDDING, F.H., u. R.S. BEAR: Phys. Rev. **42**, 58, 76 (1932); **44**, 287 (1933); **46**, 308 (1934).

⁴ ELLIS, C.B.: Phys. Rev. **50**, 675 (1936).

⁵ FREED, S., u. E.L. HAENISCH: J. Chem. Phys. **5**, 26 (1937).

⁶ GOBRECHT, H.: Ann. Phys. (5) **28**, 675 (1937).

⁷ FREYMAN, M. u. R.: C. R. Acad. Sci., Paris **211**, 785 (1940).

⁸ HELLWEGE, K.H.: Ann. Phys. (6) **4**, 95, 127, 136, 143, 150, 357 (1948).

⁹ HELLWEGE, K.H.: Z. Physik **127**, 513 (1950).

und es gelangen auch an einer Reihe dieser Salze bereits Voll- oder doch wenigstens Teilanalysen. Deshalb wurden die Absorptionsspektren dreier Samariumsalze nochmals mit besseren experimentellen Hilfsmitteln aufgenommen. Wegen der großen Zahl oder auch der großen Breite der Linien mußte die theoretische Deutung zunächst auf 7 der insgesamt beobachteten 14 Liniengruppen beschränkt werden.

II. Experimentelles

Es wurden drei Samariumsalze verschiedener Symmetrie untersucht:

1. Das Äthylsulfat, $\text{Sm}(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, ist hexagonal. Punktsymmetrie am Ort des Sm^{++} -Ions ist C_{3h} ¹⁹⁻²³.

2. Das monokline Chlorid, $\text{SmCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, hat die Symmetrie C_2 ¹⁴. Die zweizählige Drehachse A_2^z fällt mit der kristallographischen b -Achse und der z -Achse des Indexellipsoides zusammen.

3. Das Nitrat, $\text{Sm}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, ist triklin.

Die starken Absorptionslinien, die noch bei den dünnsten herstellbaren Einkristallschichten der reinen Samariumsalze „durchabsorbiert“ waren, wurden an den homologen Gadoliniumsalzen mit nur etwa 1% Samarium als Beimischung untersucht.

Die verwendeten Schichtdicken variieren zwischen 0,2 und 6 mm. Die optische Anordnung ist bereits früher beschrieben worden¹².

Die Kristalle wurden in siedendem flüssigen Helium und in flüssiger Luft von verschiedenem Dampfdruck gekühlt.

Es wurden homogene Magnetfelder bis zu 27000 Oe verwendet.

III. Experimentelle Ergebnisse und ihre Deutung

1. Allgemeines

Zwischen 17800 cm^{-1} (5600 Å) und 27800 cm^{-1} (3600 Å) werden 14 Liniengruppen beobachtet, die, wie in früheren Arbeiten, mit den großen lateinischen Buchstaben A, B, \dots bezeichnet werden. Das zugehörige Termschema (ohne die relativ schwache Kristallfeldaufspaltung) ist in Fig. 1 dargestellt.

Die Kopplung zwischen den 4f-Elektronen und dem Gitter ist beim Samarium, verglichen mit den anderen seltenen Erden, verhältnismäßig gering¹⁵. Sie ist außerdem mehr eine Eigenschaft des Elektronenterms

¹⁹ DONNAY, J. D. H., u. W. NOWACKI: Geol. Soc. Amer. Mem. **60** (1954).

¹¹ KETELAAR, J. A. A.: Physica, Haag **4**, 619 (1937).

¹² HELLWEGE, K. H., U. JOHNSEN, H. G. KAHLE u. G. SCHAACK: Z. Physik **148**, 112 (1957).

¹³ SAYRE, E. V., u. S. FREED: J. Chem. Phys. **24**, 1213 (1956).

¹⁴ PABST, A.: Amer. J. Sci. (5) **22**, 426 (1931).

¹⁵ HELLWEGE, K. H.: Ann. Phys. (5) **40**, 529 (1941); Naturwiss. **34**, 225 (1947); Gazz. chim. ital. **82**, 468 (1952).

als des Kristallgitters. So variieren die Kristallfeldaufspaltung eines Terms, sowie die Linienbreiten und die Intensitäten nur wenig und ohne Gesetzmäßigkeit von Salz zu Salz, während sie im gleichen Kristallgitter von Term zu Term relativ stark variieren.

Bei 4,2 °K liegen die Linienbreiten zwischen 0,4 und 40 cm^{-1} .

Der Einfluß der Temperatur auf die Lage der Linien ist zwischen 4,2 und 80 °K nur noch sehr gering. Die Linien verschieben sich meist um weniger als 1 cm^{-1} .

Beim Übergang von den reinen Samariumsalzen zu den Gadoliniummischkristallen verschieben sich die Linien um höchstens 3 cm^{-1} .

2. Theoretische Hilfsmittel

Bevor die verschiedenen Gruppen im einzelnen behandelt werden, sollen die theoretischen Hilfsmittel kurz zusammengestellt werden, die zum Teil bereits früher veröffentlicht wurden^{8, 9, 16}.

Bis auf die abgeschlossenen Schalen des Xenons hat das Sm^{+++} die Elektronenkonfiguration $4f^5$ mit 198 verschiedenen Termen¹⁷. Grundterm ist $^6H_{5/2}$.

In den drei untersuchten Salzen spalten die im freien Ion $(2J+1)$ -fach richtungsentarteten Terme in $\frac{1}{2}(2J+1)$ Kramerssche Dubletts auf. Diese werden durch Kristallquantenzahlen charakterisiert, deren Wertevorrat durch die Zähligkeit p der Symmetrie des Kristallfeldes bestimmt wird: Beim triklinen ($p=1$) Nitrat haben alle Termkomponenten dieselbe Quantenzahl $\mu = \frac{1}{2}$. Beim monoklinen ($p=2$) Chlorid kommen die Werte $\mu = \pm \frac{1}{2}$ vor. Beim hexagonalen ($p=6$)

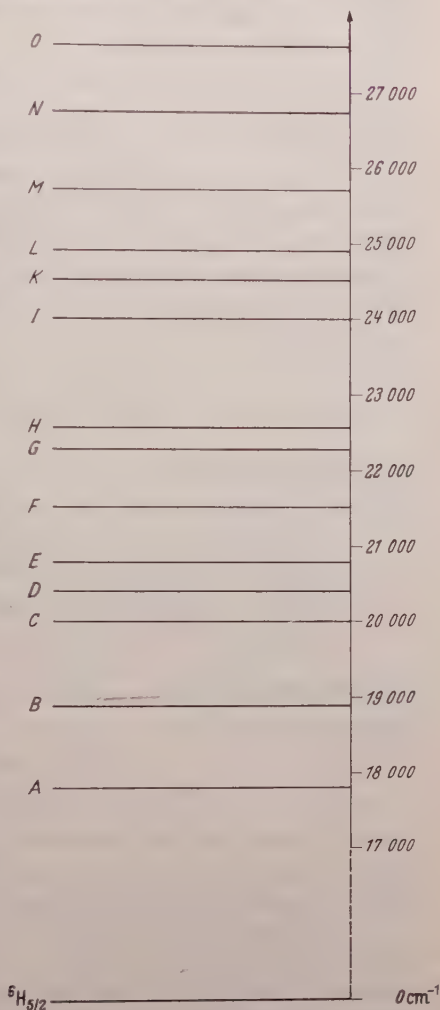


Fig. 1. Schwerpunkte der Terme des Sm^{+++} -Ions zwischen 17 000 cm^{-1} und 28 000 cm^{-1}

¹⁶ KRAMERS, H. A.: Proc. Acad. Sci. Amsterd. **33**, 959 (1930).

¹⁷ GIBBS, R. C., D. T. WILBER u. H. E. WHITE: Phys. Rev. **29**, 782 (1927).

Äthylsulfat ist die Quantenzahl $\bar{\mu}$ mit den sechs verschiedenen Werten $\bar{\mu} = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{5}{2}$ definiert. In allen Fällen fallen in einem Kramersschen Dublett zwei Eigenzustände mit entgegengesetzt gleicher Quantenzahl ($\pm \mu$ bzw. $\pm \bar{\mu}$) zusammen. Im triklinen Fall sind $\mu = -\frac{1}{2}$ und $\mu = +\frac{1}{2}$ äquivalent.

Aus der Symmetrie des Kristallfeldes folgen Übergangsverbote für strahlende Übergänge zwischen zwei Termen i und k , die die Lage und Strahlungsart der korrespondierenden klassischen Dipole bestimmen und in Auswahlregeln für die Quantenzahlen ihren Ausdruck finden.

Im Nitrat gibt es keine Übergangsverbote, d.h. alle Übergänge können mit jeder Polarisation vorkommen.

Im Chlorid gilt für elektrische und magnetische Dipolstrahlung in gleicher Weise: (P = elektrisches Dipolmoment, M = magnetisches Dipolmoment)

$$\left. \begin{array}{ll} (P_x \pm i P_y)_{ik}, (M_x \pm i M_y)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\mu = \pm 1 \text{ ist} \\ (P_z)_{ik}, (M_z)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\mu = 0 \text{ ist.} \end{array} \right\} \quad (1)$$

Im Äthylsulfat schließen sich die beiden Strahlungsarten aus. Es kann sein:

$$\left. \begin{array}{ll} (P_x \pm i P_y)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 2, \pm 4 \text{ ist,} \\ (P_z)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 3 \text{ ist,} \\ (M_x \pm i M_y)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 1, \pm 5 \text{ ist,} \\ (M_z)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = 0 \text{ ist.} \end{array} \right\} \quad (2)$$

Außerdem besteht für magnetische Dipolstrahlung bei allen Salzen die Einschränkung

$$\Delta J = 0, \pm 1. \quad (3)$$

Beim Nitrat und Chlorid sind die Werte der Quantenzahlen a priori bekannt. Beim Äthylsulfat ergeben sich aus der Polarisation der Linien die $\Delta\bar{\mu}$ -Werte, im allgemeinen jedoch nicht die $\bar{\mu}$ -Werte selbst. Die eindeutige Bestimmung von $\bar{\mu}$ ist erst über den Zeeman-Effekt möglich.

Ein homogenes äußeres Magnetfeld beliebiger Richtung zerstört die im Kristallfeld allein vorhandene Symmetrie, hebt also die symmetriebedingten Übergangsverbote auf. Beim Äthylsulfat ist daher bei Anwendung genügend starker Magnetfelder damit zu rechnen, daß neue Linien auftreten, andere ihre Polarisation ändern. Das wird bei den verwendeten Feldstärken jedoch nur selten beobachtet, z.B. bei Gruppe I.

Das Magnetfeld hebt außerdem die im Kristall noch verbliebene Kramerssche Entartung auf, so daß schließlich jeder Term des freien Ions vollständig in $2J + 1$ -Komponenten aufgespalten ist. Diese Aufspaltung ist außer bei den kleinsten J -Werten anisotrop und nimmt schon in erster Näherung einer Störungsrechnung, die Kristallfeld und Magnet-

feld gemeinsam als Störung der Zustände des freien Ions einführt, nicht mehr linear mit wachsendem Magnetfeld zu, sondern nach einer algebraischen Funktion.

Für die Richtungsabhängigkeit des linearen Anteils dieser Funktion gilt nach KRAMERS¹⁶:

$$\left. \begin{aligned} W_{(1)}^2(\vec{H}) &= s^2(\vartheta, \varphi) \mu_B^2 H^2 \\ &= \mu_B^2 H^2 (s_1^2 \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi + s_2^2 \sin^2 \vartheta \sin^2 \varphi + s_3^2 \cos^2 \vartheta). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Dabei ist $W_{(1)}(\vec{H})$ der lineare Anteil der Energieänderung einer Kristall-Termkomponente im äußeren Magnetfeld \vec{H} , $W_{(1)}(0) = 0$. \vec{H} hat die Komponenten $H_x = H \sin \vartheta \cos \varphi$, $H_y = H \sin \vartheta \sin \varphi$, $H_z = H \cos \vartheta$ mit den Polarkoordinaten ϑ, φ . μ_B — Bohrsches Magneton. Der dimensionslose, dem g -Faktor entsprechende Faktor $s(\vartheta, \varphi) = W_1(\vec{H})/\mu_B H$ enthält die Anisotropie des Zeeman-Effektes*. Wenn man den reziproken Wert der gemessenen Aufspaltung, oder $1/s(\vartheta, \varphi)$ in Richtung von \vec{H} abträgt, erhält man ein Ellipsoid, das reziproke Aufspaltungsellipsoid mit den Hauptachsen $1/s_i$ ($i = 1, 2, 3$).

Beim hexagonalen Äthylsulfat ist das reziproke Aufspaltungsellipsoid ein Rotationsellipsoid um die I_6^z . Um es festzulegen genügt die Messung der Aufspaltung im achsenparallelen und im achsensenkrechten Magnetfeld. Beim Chlorid fällt eine Hauptachsenrichtung mit der Symmetrieachse A_2^z zusammen, die beiden anderen Achsen liegen unbestimmt in der dazu senkrechten Ebene. Die drei Achsen sind verschieden lang. Die Aufspaltung muß also im achsenparallelen Magnetfeld und in verschiedenen Richtungen in der Ebene senkrecht dazu bestimmt werden.

Die funktionelle Abhängigkeit $W(H)$ für eine feste Richtung von \vec{H} ist in erster Näherung bei niedrigen J -Werten leicht zu berechnen. Hamilton-Operator des gestörten Systems ist dabei

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}^0 + \mathcal{K} + \mathcal{H}^p$$

mit \mathcal{H}^0 als Operator des freien Ions, \mathcal{K} als Kristallfeldoperator und dem Operator \mathcal{H}^p der paramagnetischen Zusatzenergie. Hier seien nur die Ergebnisse angeführt:

Beim Äthylsulfat erhält man im achsenparallelen Feld für $J \leq \frac{5}{2}$

$$W_{\vec{\mu}} = W_M = K_{MM} + M g \mu_B H, \quad \left(\begin{array}{l} \vec{\mu} = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{5}{2} \\ M = \mp \frac{5}{2}, \mp \frac{3}{2}, \mp \frac{1}{2} \end{array} \right) \quad (5)$$

* Häufig wird in der Literatur $g(\vartheta, \varphi)$, $g_{||}$, g_{\perp} an Stelle von $s(\vartheta, \varphi)$, s_1 , s_2 , s_3 geschrieben. Hier wird diese Schreibweise wegen ihrer Inkonsequenz vermieden. Beim Zeeman-Effekt freier Atome besteht die Beziehung $g = s/M$. Die Division durch die magnetische Quantenzahl M ist aber im Kristall nicht allgemein möglich, da M nicht definiert ist. Hier und im folgenden wird deshalb der Buchstabe g nur in dem bei freien Atomen üblichen Sinn verwendet.

mit der hier noch definierten magnetischen Quantenzahl

$$M \equiv (\bar{\mu} + 3) \bmod 6$$

und dem Landéschen g -Faktor (vgl. Fußnote * auf S. 555). Das ist, ausgehend vom Matrixelement K_{MM} des Kristallfeldes, der Zeeman-Effekt des freien Ions. Im achsensenkrechten Feld gilt:

Für $J = \frac{1}{2}$:

$$W_M = W_{\pm \frac{1}{2}} = K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} \pm \frac{1}{2} g \mu_B H, \quad (6)$$

wie im achsenparallelen Feld.

Für $J = \frac{3}{2}$:

$$\left. \begin{aligned} W_M = W_{\pm \frac{1}{2}} &= \pm \frac{1}{2} g \mu_B H + \sqrt{K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}}^2 \pm K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} g \mu_B H + g^2 \mu_B^2 H^2} \\ W_M = W_{\pm \frac{3}{2}} &= \pm \frac{1}{2} g \mu_B H - \sqrt{K_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}}^2 \pm K_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}} g \mu_B H + g^2 \mu_B^2 H^2} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Entwicklung des Wurzelausdrucks nach Potenzen von H ergibt:

$$\left. \begin{aligned} W_{\pm \frac{1}{2}} &= K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} \pm g \mu_B H + \frac{3g^2 \mu_B^2 H^2}{8 K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}}} + \dots \\ W_{\pm \frac{3}{2}} &= -K_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}} - \frac{3g^2 \mu_B^2 H^2}{8 K_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}}} + \dots \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Für $J \leq \frac{5}{2}$ gilt allgemein:

$$W_M = W_{\pm \frac{1}{2}} = K_{\frac{1}{2}\frac{1}{2}} \pm \frac{1}{2} (J + \frac{1}{2}) g \mu_B H + \dots \quad (9)$$

Das heißt die eine Komponente, $W_{\pm \frac{1}{2}}$, spaltet linear auf. Dagegen spalten die anderen Komponenten erst in dritter ($\sim H^3$) oder höherer Ordnung auf, haben also zu Ebenenpaaren ausgeartete reziproke Aufspaltungs-ellipsoide. Für $J = \frac{5}{2}$ wurden die Nullstellen der Säkulargleichung 6. Grades vom I.P.M. in Darmstadt numerisch berechnet.

Für $\frac{7}{2} \leq J \leq \frac{11}{2}$ ist wenigstens der achsenparallele Zeeman-Effekt noch in geschlossener Form anzugeben. Es ist für $|M| < 3$

$$\left. \begin{aligned} W_{\mp|M|} &= \frac{1}{2} (K_{MM} + K_{6-M,6-M} \pm (6-2|M|) g \mu_B H) - \\ &\quad - \frac{1}{2} \sqrt{(K_{6-M,6-M} - K_{MM} \pm 6g \mu_B H)^2 + 4|K_{6-M,M}|^2}, \\ \text{und für } |M| > 3 \\ W_{\mp|M|} &= \frac{1}{2} (K_{MM} + K_{6-M,6-M} \pm (2|M| - 6) g \mu_B H) + \\ &\quad + \frac{1}{2} \sqrt{(K_{MM} - K_{6-M,6-M} \pm 6g \mu_B H)^2 + 4|K_{M,6-M}|^2}. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

3. Beschreibung und Deutung der Spektren

a) *Übersicht.* Im folgenden seien einige wichtige, den Gruppen gemeinsame Ergebnisse vorweggenommen:

Im *Äthylsulfat* stimmen die Beobachtungen in zweierlei Hinsicht mit der Theorie gut überein. 1. Die Auswahlregeln werden befolgt. Die

Angabe der $1\bar{\mu}$ -Werte ist also eindeutig möglich. 2. Lineare Zeeman-Effekte werden genau bei denjenigen Termkomponenten beobachtet, bei denen sie die Theorie verlangt. - Bestimmt man nun aus den linearen Anteilen der Aufspaltungen verschiedener Komponenten eines Terms für verschiedene Magnetfeldrichtungen den (für das freie Ion definierten!) g -Faktor, so müßte sich derselbe Wert ergeben. Tatsächlich mißt man jedoch etwas verschiedene Werte. Man muß hieraus schließen, daß das Kristallfeld nicht nur die Richtungsentartung eines $(2J + 1)$ -fach entarteten Terms des freien Ions aufhebt (erste Näherung), sondern bereits Zustände mit verschiedenem J durchmischt (zweite Näherung). Da benachbarte Zustände des freien Ions sehr verschiedene g -Faktoren haben können, können sehr geringe Beimischungen von Nachbarzuständen bereits starke Abweichungen des im Kristall gemessenen g -Faktors von dem des freien Ions hervorrufen. ELLIOTT und STEVENS¹⁸ zeigten dies bereits in einer Störungsrechnung zweiter Näherung für die unterste Grundtermkomponente des Samarium-äthylsulfats.

Beim *Chlorid* zeigen sich an einigen Gruppen dieselben Effekte, wie sie von DIEKE und CROSSWHITE¹⁹ am homologen Yb-Salz bei der einzigen dort möglichen Liniengruppe beobachtet wurden. 1. Es fehlen Linien, deren Ausbleiben im allgemeinsten zweizähligen Kristallfeld nicht verstanden werden kann. Hier müssen neue Übergangsverbote herangezogen werden. 2. Die reziproken Aufspaltungsellipsoide sind zu Ebenenpaaren ausgeartet, deren Normalen senkrecht zur zweizähligen Symmetrieachse in verschiedenen Richtungen liegen, d. h. parallel zur A_2^z wird im Gegensatz zu der theoretischen Erwartung im allgemeinsten zweizähligen Feld kein linearer Zeeman-Effekt beobachtet, während er in der Ebene senkrecht dazu zwischen Null und einem Maximum (im folgenden maximale Aufspaltung genannt) variiert. 3. Während sich aber beim Yb die maximalen linearen Aufspaltungen bei festem J wie die vorkommenden M -Werte verhalten, ist dies beim Sm nicht der Fall. — DIEKE und CROSSWHITE suchten ihre Beobachtungen mit dem Vorhandensein einer pseudohexagonalen Symmetrieachse zu erklären, deren Lage senkrecht zur A_2^z verschieden ist für verschiedene Termkomponenten. Die Sechszähligkeit wird durch die Koordinationszahl sechs des Hydratkomplexes nahegelegt. Eine kleinere Zähligkeit würde außerdem nicht die gewünschten Übergangsverbote liefern (s. Punkt 1). Aus demselben Grund kommt auch bei beiden Salzen nur eine Pseudo-Deckachse A_6^y und nicht eine Inversionsachse I_6^y in Frage; denn bei einer A_6^y gelten für elektrische und magnetische Dipolstrahlung dieselben

¹⁸ ELLIOTT, R. U., u. K. W. H. STEVENS: J. Phys. Soc. **65**, 370 (1952).

¹⁹ DIEKE, G. H., u. H. M. CROSSWHITE: J. Opt. Soc. Amer. **46**, 885 (1956).

Auswahlregeln: Mit $M \equiv \mu \pmod{6}$ ist

$$\left. \begin{array}{ll} (P_z \pm i P_x)_{ik}, & (M_z \pm i M_x)_{ik} \neq 0 \quad \text{nur, wenn } \Delta\mu = \pm 1, \pm 5 \text{ ist,} \\ (P_y)_{ik}, & (M_y)_{ik} \neq 0 \quad \text{nur, wenn } \Delta\mu = 0 \quad \text{ist.} \end{array} \right\} \quad (11)$$

Die Übergänge mit $\Delta\mu = \pm 2, \pm 3, \pm 4$ sind für beide Strahlungsarten verboten, wodurch die oben für die fehlenden Linien geforderten Übergangsverbote geliefert werden. Dagegen wäre bei einer I_6 [vgl. (2)] zwischen den in Frage kommenden Termen immer eine der beiden Strahlungsarten erlaubt, wie es an der I_6^2 im Äthylsulfat auch beobachtet wird.

Dies geschilderte Verhalten wird beim Sm-Chlorid aber keineswegs bei allen Gruppen beobachtet. Es muß deshalb offen bleiben, wie weit sich die von DIEKE und CROSSWHITE gezogenen Rückschlüsse auf die Struktur des Chloridgitters auch bei Vervollständigung des bisher nur mageren experimentellen Materials bewähren werden*.

Beim *Nitrat* wurden keine Aufnahmen mit Magnetfeld gemacht. Es interessierte lediglich die Linienzahl im Spektrum eines Salzes geringster Symmetrie, nachdem beim Chlorid Linien vermißt wurden.

b) *Grundterm*. Bei 4,2 °K ist in den drei Salzen nur die unterste Kristallfeldkomponente *I* des Grundterms besetzt. Alle Linien führen von ihr aus zu den angeregten Termen *A, B, ...* Bei höheren Temperaturen sind nach Maßgabe des Boltzmann-Faktors auch die höheren Grundtermkomponenten *II* und *III* besetzt, und man beobachtet eventuell auch die von ihnen ausgehenden Übergänge.

Tabelle 1

Komponente	$\bar{\mu}$	M	$K_M M / h c$
I	$\mp \frac{5}{2}$	$\pm \frac{1}{2}$	$-39,1 \text{ cm}^{-1}$
II	$\mp \frac{3}{2}$	$\pm \frac{3}{2}$	14,7
III	$\mp \frac{1}{2}$	$\pm \frac{5}{2}$	24,5

Im *Äthylsulfat* liegen die beiden oberen Grundtermkomponenten *II* und *III* bei 53,8 und 63,6 cm^{-1} . Die Werte der Quantenzahlen (bestimmt aus Polarisation und Zeeman-Effekt der Linien) und Kristallfeldmatrixelemente (bestimmt aus der vom Schwerpunkt aus gemessenen Größe der Kristallfeldaufspaltung) sind aus folgender Tabelle 1 zu entnehmen.

Der Zeeman-Effekt ergibt für die Komponente *I*

$$g = 2s_3(I) = 0,509 \pm 0,015$$

und

$$g = \frac{2}{3}s_1(I) = 0,201 \pm 0,005$$

* Weitere Experimente und Überlegungen am Eu-Chlorid werden demnächst von H. G. KAHLE publiziert.

in guter Übereinstimmung mit den mit der Methode der paramagnetischen Resonanz erhaltenen Ergebnissen von BOGLE und SCOVIL²⁰. Wie schon oben erwähnt, sollten diese beiden Werte gleich groß sein. Ihre Differenz ergibt sich nach dem Vorschlag von ELLIOTT und STEVENS¹⁸ aus der Beimischung fremder Terme im Kristall. Beide Werte und damit die Zeemanaufspaltung des Terms sind so klein, daß die Aufspaltung innerhalb der experimentellen Fehlergrenze linear erscheint. — Leider sind bei 54° K die Linien so breit, daß der Zeeman-Effekt der Komponenten *II* und *III* nicht untersucht werden konnte. Nach groben Schätzungen ergibt sich experimentell $g \approx 0,2$. Der theoretische Wert für Russell-Saunders-Kopplung* ist $g_{th} = 0,286$.

Im *Chlorid* wurde bei den verwendeten Temperaturen außer der untersten keine weitere Aufspaltungskomponente des Grundterms gefunden. Nach Angaben von SPEDDING und BEAR³ liegen die beiden oberen Komponenten *II*, *III* zwischen 145 und 315 cm⁻¹. — Das reziproke Aufspaltungsellipsoid der untersten Komponente ist in ein Ebenenpaar ausgeartet (vgl. Fig. 6). Die Richtung der maximalen Aufspaltung $s_1 = 0,4$ in der Ebene senkrecht zur A_2^z schließt mit der x -Achse des Indexellipsoides einen Winkel von 21° ein. Der Grundterm ist also bereits das erste Beispiel für die Effekte der pseudohexagonalen Symmetrie im Chlorid. Für eine der sechszähligen Pseudosymmetrie zugeordnete Quantenzahl μ bzw. M folgt auf Grund der Auswahlregeln (11) und wegen des Zeeman-Effektes nach (5) und der Erläuterungen zu (9) $\mu = M = \pm \frac{5}{2}$ für die unterste Grundtermkomponente im Chlorid.

Im *Nitrat* liegen zwei Komponenten *I* und *II* bei 0 und 41 cm⁻¹. Die dritte dürfte so hoch liegen, daß sie bei 80 °K noch nicht genügend besetzt ist.

c) *Gruppe C*. Die Figuren 2 bis 6 zeigen die Gruppe C im Spektrum der drei Salze, die Aufspaltung der scharfen Linien des Äthylsulfats im achsenparallelen und achsensenkrechten Magnetfeld, das hieraus gewonnene Termschema des Äthylsulfats mit den beobachteten Übergängen sowie die reziproken Aufspaltungsellipsoide der beiden scharfen Komponenten des angeregten Terms und der untersten Grundtermkomponente im Chlorid. Die Gruppe enthält Übergänge in elektrischer und magnetischer Dipolstrahlung. — Zunächst ist zweifelhaft, ob die in allen drei Salzen breite und verwaschene Linie ganz rechts mit zur Gruppe gehört, oder ob sie zu einem neuen Term führt. Die Beantwortung dieser Frage entscheidet über den J -Wert des angeregten Terms, für den, je

* In der Diskussion wird von der einfachsten Annahme ausgegangen, daß beim Samarium die Abweichung von der R - S -Kopplung nicht allzu groß ist.

²⁰ BOGLE, G. S., u. H. E. D. SCOVIL: J. Phys. Soc. **65**, 368 (1952).

nachdem, ob der Term in 3 oder 4 Komponenten aufgespalten ist, $\frac{5}{2}$ oder $\frac{7}{2}$ in Frage kommt. Das einzige Kriterium hierfür liefert der lineare Anteil des Zeeman-Effektes der scharfen Komponenten im Äthylsulfat*. Im achsenparallelen Magnetfeld spaltet jede Linie in vier Komponenten auf**. Der kleine Abstand zwischen zwei benachbarten Komponenten verschiedener Polarisation ist gleich der Aufspaltung der Grundterm-

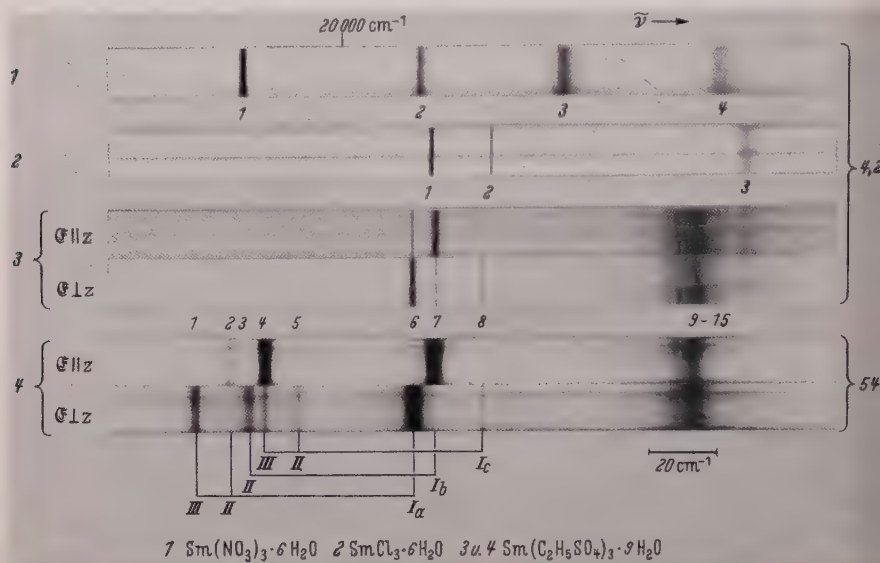


Fig. 2. Liniengruppe C bei 4,2 °K im Samariumnitrat, Samariumchlorid und Samariumäthylsulfat und bei 54 °K im Samariumäthylsulfat. 6m-Konkavgitter, 3. Ordnung, photographisches Positiv. \mathcal{E} elektrischer Vektor der senkrecht zur Symmetrieachse I_0^0 eingestrahlichten Lichtwelle, z Richtung der Symmetrieachse, $\tilde{\nu}$ Wellenzahl. Die Spektren sind in polarisiertem Licht aufgenommen. Beim Nitrat und Chlorid ist nur eine Polarisationsrichtung wiedergegeben. Deshalb geben die Schwärzungen die Intensitätsverhältnisse der Linien hier nur teilweise richtig wieder. 1, 2, ... Nummern der Linien wie im Termschema. Beim Äthylsulfat sind am Rande die gedeuteten Übergänge angegeben. I, II, III bzw. a, b, \dots Bezeichnung der Aufspaltungskomponenten des Grundterms bzw. des angeregten Terms, I_a Übergang von I nach a , usw.

komponente I , bei 26000 Oe etwa 1 cm^{-1} ; der größere Abstand zwischen zwei Komponenten verschiedener Polarisation gibt die Aufspaltung des angeregten Terms wieder. Die rein linearen Aufspaltungen der Termkomponenten a und b im achsenparallelen Feld verhalten sich angenähert wie 5:3. Ordnet man ihnen deshalb die Quantenzahlen $M = \pm \frac{5}{2}$ und $\pm \frac{3}{2}$ zu, so ergibt sich nach Division durch M für beide Komponenten fast

* Seine Beweiskraft wird allerdings durch die oben erwähnte eventuelle Beimischung fremder Terme in zweiter Näherung eingeschränkt.

** Wegen zu geringer Intensität kommen die Komponenten der Linie 8 in der Reproduktion leider nicht aus dem Untergrund hervor.

der gleiche Wert für den g -Faktor*:

$$4,2^\circ\text{K}: g_a = 1,07 \pm 0,015, \quad g_b = 1,01 \pm 0,015$$

$$54^\circ\text{K}: g_a = 0,99, \quad g_b = 0,94.$$

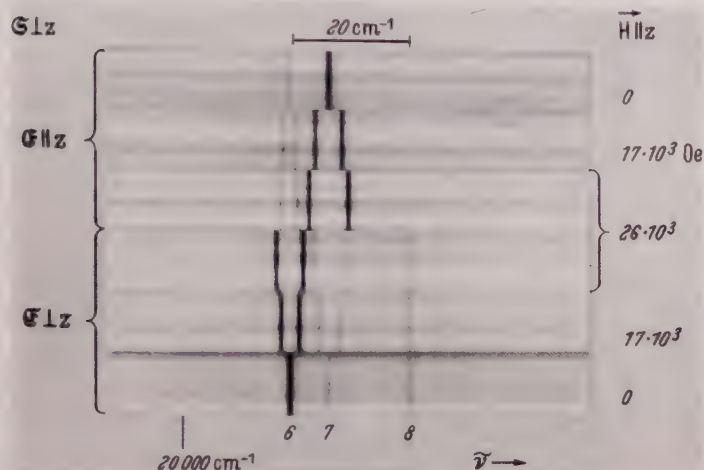


Fig. 3

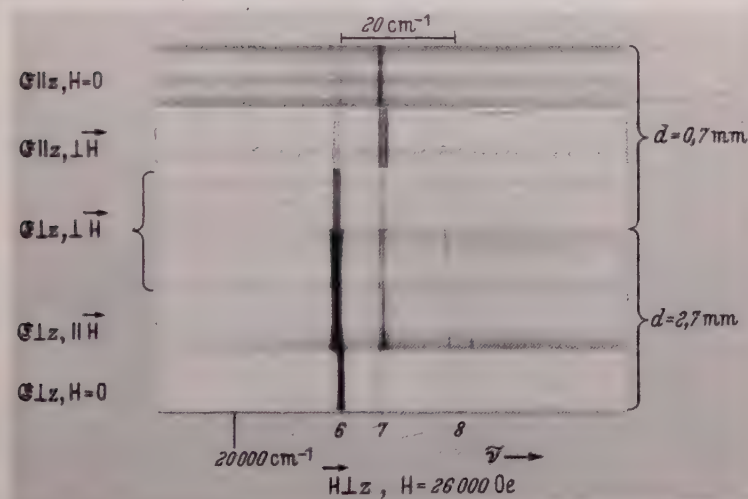


Fig. 4

Fig. 3 u. 4. Zeeman-Effekt der Gruppe C im achsenparallelen und achsenkrechten Magnetfeld bei $4,2^\circ\text{K}$.
 \odot Strahlvektor. Aufnahme und Darstellung wie in Fig. 2

* Wegen der thermischen Kontraktion des Gitters hängt der g -Faktor etwas von der Temperatur ab, ein Effekt, der in den oben zusammengestellten Formeln erster Näherung nicht enthalten ist.

Die, wenn auch nur geringe Abweichung vom Verhältnis 5:3 spricht für $J = \frac{7}{2}$; denn die für $J = \frac{5}{2}$ gültige Gl. (5) verlangt, daß sich die Zeeman-Effekte der beiden Komponenten exakt wie 5:3 verhalten, während die bei $J = \frac{7}{2}$ anzuwendende Gl. (10) dies schon in erster Näherung nicht tut. Im selben Sinne schließt man nach (9) aus dem linearen Anteil des achsen-senkrechten Zeeman-Effektes von c : Für $J = \frac{7}{2}$ ergeben die Messungen $g = 0,98$, während sich für $J = \frac{5}{2}$ der Wert $g = 1,31$ ergäbe. Als ange-regter Term kommt auf Grund dieser Überlegung bei Russell-Saunders-Kopplung ${}^4G_{\frac{3}{2}}$ mit dem theoretischen g -Wert $g_{\text{th}} = 1,016$ in Frage.

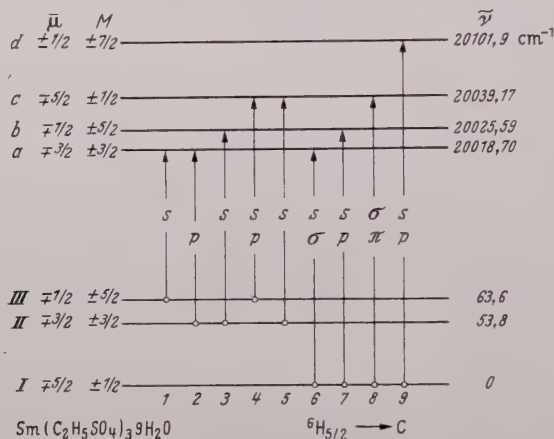


Fig. 5. Termenschema und beobachtete Übergänge der Gruppe C im Äthylsulfat. *I, II, III* bzw. *a, b, ...* Bezeichnung der Aufspaltungskomponenten des Grundterms bzw. des angeregten Terms. $\bar{\mu}$ Kristallquantenzahl, M magnetische Quantenzahl, die oberen bzw. unteren Vorzeichen von $\bar{\mu}$ und M sind einander zugeordnet. $\tilde{\nu}$ Wellenzahl. 1, 2, ... Nummern der Linien wie in Fig. 2. Die lateinischen bzw. griechischen Buchstaben an den Übergangspfeilen bedeuten elektrische bzw. magnetische Dipole parallel (p, π) und senkrecht (s, σ) zur Symmetrieechse I_6^2 .

Schließt man aus dem Fehlen eines quadratischen Effektes im achsenparallelen Feld und aus der geringen Abweichung vom Verhältnis 5:3, daß $|K_{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}|$ innerhalb der Meßgenauigkeit gleich Null ist, so ergeben sich für die anderen Matrixelemente des Kristallfeldes die Werte:

$$K_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}}/hc = -7,17 \text{ cm}^{-1}, \quad K_{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}/hc = -27,64 \text{ cm}^{-1}, \quad K_{\frac{5}{2}, \frac{5}{2}}/hc = -20,75 \text{ cm}^{-1}, \\ K_{\frac{3}{2}, \frac{5}{2}}/hc = 55,56 \text{ cm}^{-1}$$

mit dem Termschwerpunkt $20046,34 \text{ cm}^{-1}$. (Als Alternativlösung für $J = \frac{5}{2}$ käme ${}^4F_{\frac{3}{2}}$ mit $g_{\text{th}} = 1,029$, den Matrixelementen $K_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}}/hc = 11,35 \text{ cm}^{-1}$, $K_{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}}/hc = -9,12 \text{ cm}^{-1}$, $K_{\frac{5}{2}, \frac{5}{2}}/hc = -2,23 \text{ cm}^{-1}$ und dem Schwerpunkt $20027,82 \text{ cm}^{-1}$ in Frage.)

Die im achsensenkrechten Magnetfeld gemessenen Zeeman-Effekte höherer Ordnung stimmen qualitativ mit den numerisch berechneten gut

überein. Für einen quantitativen Vergleich reichten die verwendeten Feldstärken nicht aus.

Im *Chlorid* wird eine Linie weniger beobachtet als in den beiden anderen Salzen. Die reziproken Aufspaltungsellipsoide der beiden scharfen Komponenten a und b sind beide zu Ebenenpaaren ausgeartet. Maximale Aufspaltung und Lage der Ebenennormalen sind in Fig. 6

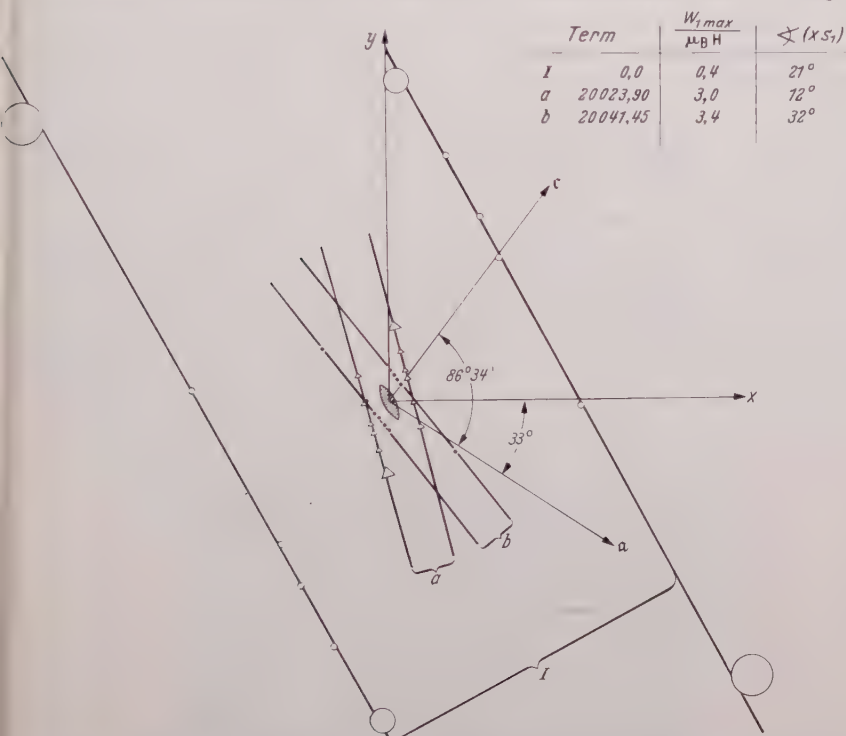


Fig. 6. Schnittgeraden der zu Ebenenpaaren ausgearteten reziproken Aufspaltungsellipsoide der Gruppe C und untersten Grundtermkomponente im Chlorid mit der Ebene senkrecht zur zweizähligen Drehachse A_2^+ . α, c kristallographische Achsen. x, y Indexellipsoidachsen. $1/s_1$ Hauptachsen des reziproken Aufspaltungsellipsoides. I Grundtermkomponente, a, b Komponenten des angeregten Terms. Die Größe der Kreise und Dreiecke gibt die Meßgenauigkeit an

angegeben. Gruppe C ist also ein Beispiel für die Effekte des pseudo-hexagonalen Kristallfeldes. Der sechszähligen Symmetrieachse zugeordnete Quantenzahlen würden auf Grund der Auswahlregeln (11) und wegen des Zeeman-Effektes der Komponenten die Werte:

$$a: \mu = M = \pm \frac{3}{2}, \quad b: \mu = M = \pm \frac{5}{2}$$

haben.

d) *Gruppe K.* Die Fig. 7—9 zeigen die Gruppe K im Spektrum der drei Salze, den Zeeman-Effekt und das Termschema des Äthylsulfats. Die Gruppe besteht im *Nitrat* und *Chlorid* aus sieben Linien, von denen

im Chlorid eine allerdings nur sehr schwach ist. Für den angeregten Term kommt hiernach der Wert $J = \frac{13}{2}$ in Frage.

Im Äthylsulfat werden bei 4,2 K nur drei Linien beobachtet, denen aber wegen der geltenden Übergangsverbote ebenfalls sieben Komponenten entsprechen. c mit $\bar{\mu} = \pm \frac{1}{2}$ und d mit $\bar{\mu} = \pm \frac{3}{2}$ sind miteinander zufällig entartet oder liegen doch wenigstens so nahe zusammen, daß sie nicht getrennt werden können. Das sieht man deutlich daran, daß Linie 11 im achsenparallelen und im achsensenkrechten Magnetfeld in sechs Komponenten aufspaltet (Fig. 8). Zwei Linien spalten maximal

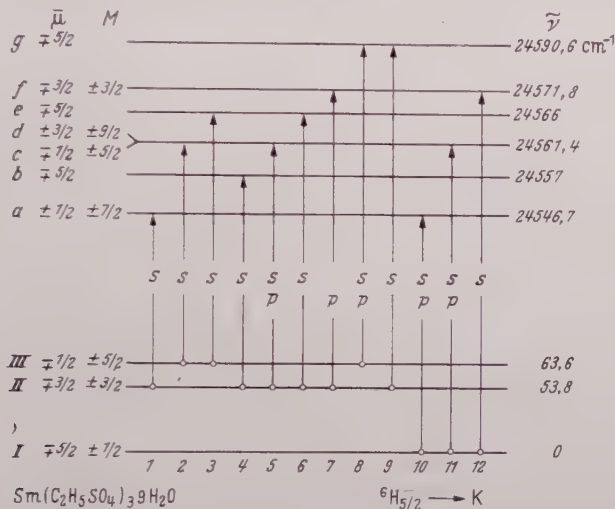


Fig. 9. Termenschema der Gruppe K im Äthylsulfat. Bedeutung der Buchstaben wie in Fig. 5

in acht Komponenten auf. Der Übergang $Id(\bar{\mu} = \pm \frac{5}{2} \rightarrow \bar{\mu} = \pm \frac{3}{2})$ kann wegen der Auswahlregeln (2) und (3) jedoch nur in elektrischer Dipolstrahlung senkrecht zur I_0^z stattfinden und deshalb im Magnetfeld nur in zwei Komponenten aufspalten. Da der J -Wert des Terms verhältnismäßig groß ist, müssen die linearen Anteile der achsenparallelen Zeeman-Aufspaltungen keineswegs proportional zu vorkommenden M -Werten sein [vgl. (10)]. Dies ist aber trotzdem bei den bei 4,2 °K beobachteten Komponenten angenähert der Fall. Dividiert man nämlich die gemessenen Aufspaltungen durch die plausiblen M -Werte $\frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \frac{7}{2}, \frac{9}{2}$, so ergeben sich fast gleiche Werte: $g = 0,77$ bis $0,83$. Bei Russell-Saunders-Kopplung kommt hiernach als angeregter Term $^4L_{13/2}$ mit $g_{th} = 0,80$ in Frage.

Im Chlorid hat nur die Komponente f einen linearen Zeeman-Effekt parallel zur A_2^z . Ebenenpaare als reziproke Aufspaltungsellipsoide haben

b und c . Die anderen Komponenten haben dreiaxige Ellipsoide. Ihre Lage und Größe ist in Tabelle 2 angegeben.

Tabelle 2

Nr.	Untersuchte Linie			Hauptaufsplittings des oberen Terms			
	Übergang	Sm-Chlorid cm ⁻¹	Gd(Sm)-Chlorid cm ⁻¹	s_1	s_2	s_3	$\angle(x, s_1)$
1	Ia	24 540,2	24 537,7	4,1		0	35°
2	Ib	24 568,1	24 565,6	3,5	0	0	30°
3	Ic	24 585,8	24 583,0	3,3	0	0	40°
4	Id	24 617,0	24 614,2	2,7	1,0	0	53°
5	Ie	24 634,5	24 631,9	1,6	1,2	0	45°
6	If	24 652,6	24 649,9	1,3	2,1	2,7	52°
7	Ig	24 654	— 59				

e) *Gruppe B*. Die Gruppe B besteht in allen drei Salzen bei 4,2 °K aus zwei schwachen, mittelbreiten Linien, die elektrische und magnetische Dipolstrahlung enthalten. Bei 54 °K kommen im Äthylsulfat vier weitere Linien hinzu. Ihre Polarisation und Deutung ist dem Termschema in Fig. 10 zu entnehmen. J hat den Wert $\frac{3}{2}$. Die beiden Kristallfeldmatrixelemente im Äthylsulfat sind entgegengesetzt gleich:

$$K_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}}/hc = 0,87 \text{ cm}^{-1}$$

$$K_{\frac{3}{2}\frac{3}{2}}/hc = -0,87 \text{ cm}^{-1}.$$

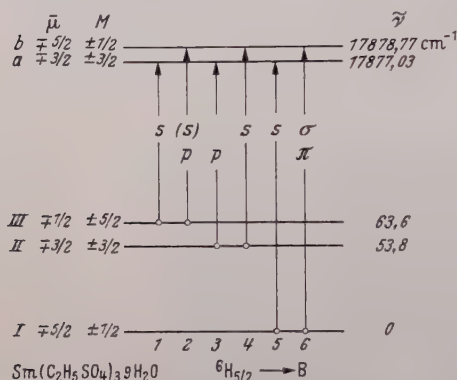


Fig. 10. Termschema und beobachtete Übergänge der Gruppe B im Äthylsulfat. Bedeutung der Buchstaben wie in Fig. 5

Alle Zeeman-Aufsplittings sind nur sehr klein. Beim Äthylsulfat ergibt sich aus der linearen Aufspaltung von a im achsenparallelen Feld: $g = \frac{2}{3} s_3(a) = 0,47$. Als angeregter Term kommt hiernach 4F_3 in Frage. — Im Chlorid hat die Komponente a ihre maximale Aufspaltung parallel zur A_2^z , b senkrecht dazu. Hieraus folgt nach (5) und (8) für die der pseudo-hexagonalen Achse zugeordneten Quantenzahlen: a hat $\mu = M = \pm \frac{1}{2}$, b hat $\mu = M = \pm \frac{3}{2}$. Andererseits wirken jedoch die zweizähligen Kristallfeldanteile so stark auf diesen Term, daß der für eine A_6^z verbotene Übergang Ia doch beobachtet wird. Die relativ große Intensität dieser Linie würde besser zu der Annahme passen, daß es sich nicht um eine pseudo-hexagonale Drehachse, sondern um eine Inversionsachse handelt. Dem widersprechen jedoch die Beobachtungen an den anderen Gruppen.

f) *Gruppe I*. Die Deutung der Gruppe *I* wird dadurch in Frage gestellt, daß bei genügend großen Schichten neben den wenigen intensiven Linien eine ganze Reihe sehr schwacher „Begleiter“ beobachtet wird (vgl. Fig. 11). Beim Äthylsulfat sind diese Linien sehr scharf, im Chlorid breiter, während im Nitrat sehr scharfe neben sehr breiten auftauchen.

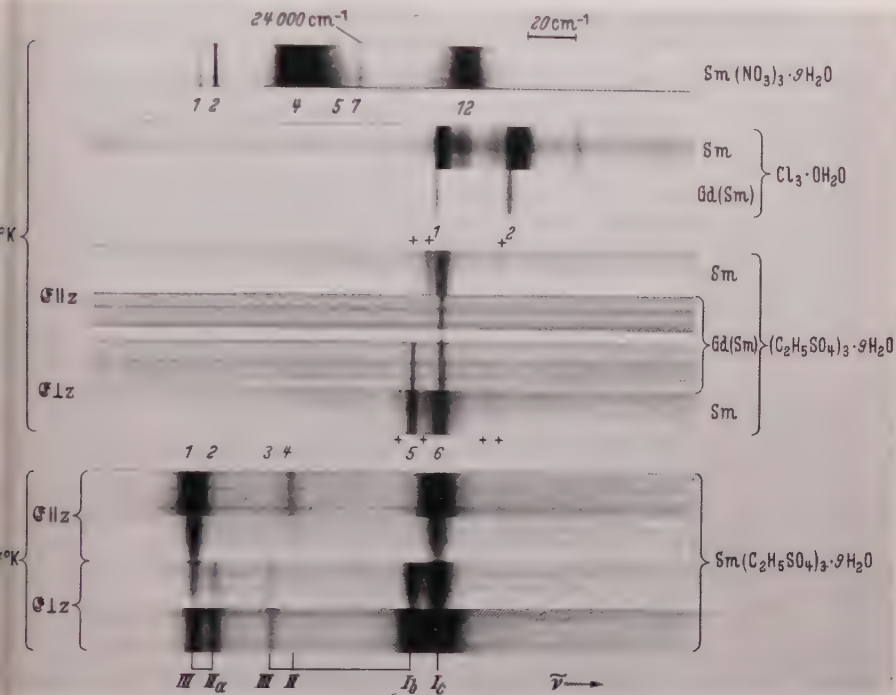


Fig. 11. Gruppe *I* im Spektrum der drei Salze bei verschiedenen Schichtdicken. Sm-Nitrat: $d = 0,5$ mm, Sm-Chlorid $d = 0,4$ mm, Gd(Sm)-Chlorid: $d = 0,9$ mm, Sm-Äthylsulfat: $d = 0,5$ mm und Gd(Sm)-Äthylsulfat: $d = 0,9$ mm bei $4,2^\circ\text{K}$. Sm-Äthylsulfat: $d = 0,9$ mm innen und $d = 2,0$ mm außen bei 54°K . Mit + bezeichnet sind die nur bei großen Schichtdicken beobachteten Begleiterlinien. Sonst Aufnahme wie bei Fig. 2

Eine Erklärung für sie konnte nicht gefunden werden. Es könnte sich um einen neuen Term handeln. Es wäre aber auch möglich, daß alle Linien zu einem einzigen Term führen, dessen J -Wert dann etwa $\frac{19}{2}$ wäre.

Berücksichtigt man bei der Deutung nur die intensiven Linien, so hat J den Wert $\frac{5}{2}$ und das Äthylsulfat das in Fig. 12 dargestellte Term-schema. Quantenzahlen, Matrixelemente und die wiederum etwas verschiedenen Werte von g sind aus der Tabelle 3 zu entnehmen.

Bei Russell-Saunders-Kopplung kommt hiernach als angeregter Term $^6P_{\frac{5}{2}}$ oder $^4P_{\frac{5}{2}}$ in Frage.

Tabelle 3

Komponente	a	b	c
$\bar{\mu}$	$\mp \frac{5}{2}$	$\mp \frac{3}{2}$	$\mp \frac{1}{2}$
M	$\pm \frac{5}{2}$	$\pm \frac{3}{2}$	$\pm \frac{1}{2}$
K_{MM}/hc . . .	$-28,1 \text{ cm}^{-1}$	$7,8 \text{ cm}^{-1}$	$20,3 \text{ cm}^{-1}$
g (aus $H z$) .		$1,66 \pm 0,05$	$1,81 \pm 0,05$
g (aus $H \perp z$) .	4,5		

g) Gruppe L. Die Gruppe L enthält neben sehr schwachen die intensivsten Linien des gesamten Spektrums. Im *Chlorid* und *Nitrat* werden mit Sicherheit fünf beobachtet, wenn man eine sehr schwache sechste

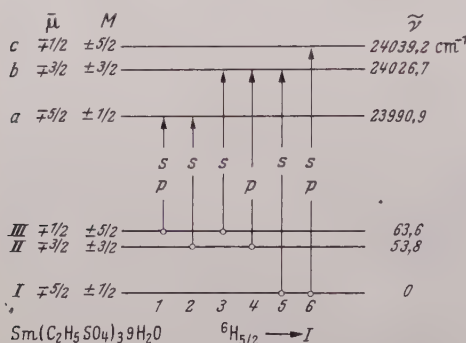


Fig. 12. Termschema und Übergänge der Gruppe I im Äthylsulfat ohne Berücksichtigung der in Fig. 11 mit + bezeichneten Begleiterlinien. Bezeichnungen wie in Fig. 5

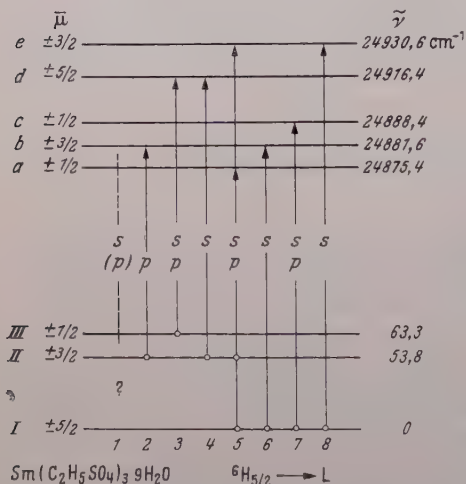


Fig. 13. Termschema und beobachtete Übergänge der Gruppe L im Äthylsulfat

Linie nicht mitzählt, sonst sechs. Für den angeregten Term kommt also der Wert $J = \frac{9}{2}$ oder $\frac{11}{2}$ in Frage. Zum Termschema des Äthylsulfats in Fig. 13 ist zu sagen, daß durch die Lage und Polarisation der intensiven Linien 2, 3, 4, 6, 8 die Komponenten b, d, e bezüglich ihrer Lage und Quantenzahlen leicht zu bestimmen sind, daß a und c jedoch nur durch Aufnahmen mit sehr großen Schichtdicken und mit schwach dejustierten Kristallen gefunden wurden. Linie 1 erscheint nur bei 54°K bei sehr dicken Schichten. Je nachdem, ob sie zur Gruppe gehört oder nicht, hat der angeregte Term $J = \frac{9}{2}$ oder $\frac{11}{2}$. — Alle Komponenten spalten im achsenparallelen Magnetfeld linear auf. Die Linien sind jedoch, ebenso wie beim Chlorid, für quantitative Angaben zu breit.

h) Gruppe A. Gruppe A besteht im *Chlorid* aus einer sehr scharfen und einer mittelbreiten Linie (vgl. Fig. 14). Die reziproken Aufspaltungsellipsoide der Termkomponenten a und b , zu

denen sie führen, sind wie bei Gruppe C in Ebenenpaare ausgeartet. Die Richtungen ihrer maximalen Aufspaltungen $s_1 = 1,22$ und $1,27$ bilden mit der x -Achse des Indexellipsoides einen Winkel von 18 und 38° .

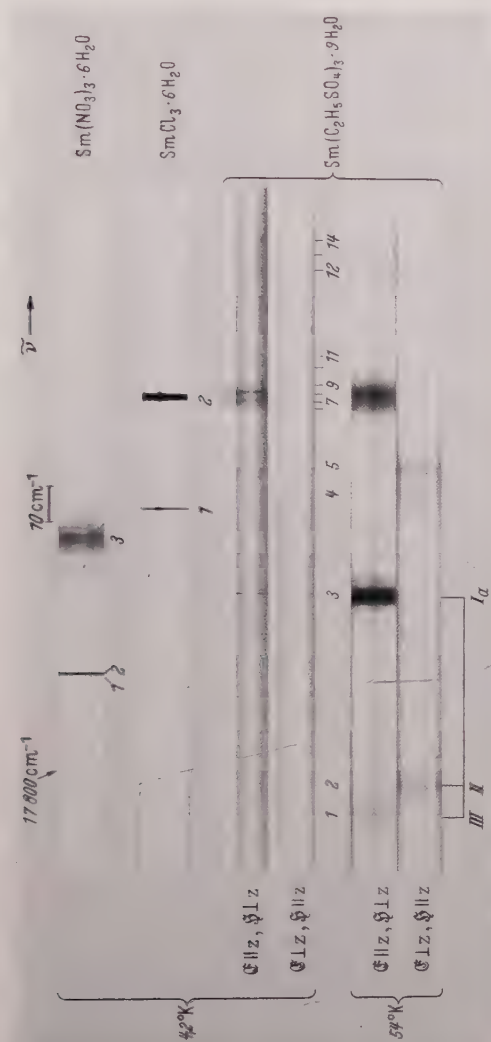


Fig. 14. Gruppe 4 im Spektrum der drei Salze. Bezeichnungen wie in Fig. 2

Dieses Verhalten im äußeren Magnetfeld deutet wieder auf die pseudo-hexagonale Symmetrie hin, bezüglich der die Komponenten dann $\mu = M = \pm \frac{3}{2}$ und $\pm \frac{5}{2}$ haben müssen. Hieraus folgt $J = \frac{5}{2}$.

Im *Nitrat* wird eine sehr scharfe, sehr schwache Linie neben $(0,78 \text{ cm}^{-1})$ einer ebenso scharfen, sehr intensiven beobachtet und außerdem eine

Im Äthylsulfat beobachtet man eine sehr scharfe Termkomponente mit $\bar{\mu} = \mp \frac{3}{2} (M = \pm \frac{3}{2})$, zu der von allen drei Grundtermkomponenten aus Übergänge in magnetischer Dipolstrahlung mit geringer Beimischung elektrischer Dipolstrahlung führen. Außerdem werden noch einige schwache, breite, schlecht polarisierte Linien beobachtet, die keinerlei Schlüsse erlauben. Der richtige J -Wert folgt also auch aus dem Spektrum des Äthylsulfats nicht eindeutig. Sehr wahrscheinlich ist $J = \frac{5}{2}$, da sonst der Zeeman-Effekt im Chlorid nicht zu verstehen ist. Aus der

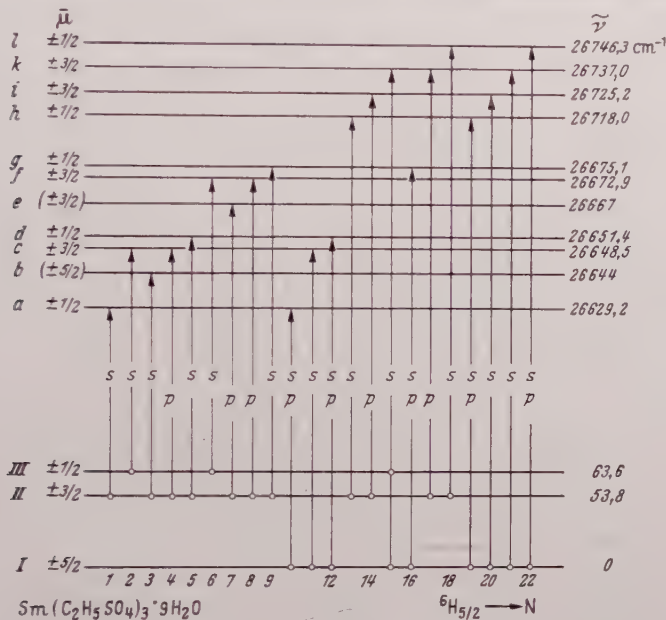


Fig. 16. Termschema der Gruppe N im Äthylsulfat. Bedeutung der Buchstaben wie in Fig. 5

Aufspaltung der einen Komponente im Äthylsulfat folgt $g = \frac{2}{3} s_3 = 0,70$, wonach für den angeregten Term ${}^4G_{\frac{3}{2}}$, ${}^2F_{\frac{3}{2}}$ oder ${}^2D_{\frac{3}{2}}$ in Frage kommen.

i) Gruppe N. Bei der in Fig. 15 wiedergegebenen Gruppe N handelt es sich sehr wahrscheinlich um zwei angeregte Terme mit dicht zusammen liegenden Schwerpunkten. Sie führt nämlich im Äthylsulfat zu fünf Zuständen mit $\bar{\mu} = \pm \frac{1}{2}$, die aus den Zuständen mit $|M| = \frac{5}{2}, \frac{7}{2}, \frac{17}{2}, \frac{19}{2}, \frac{29}{2}$ des freien Ions linear kombiniert würden, und zu vier oder fünf Zuständen mit $\bar{\mu} = \pm \frac{3}{2}$ bzw. $|M| = \frac{3}{2}, \frac{9}{2}, \frac{15}{2}, \frac{21}{2} (\frac{27}{2})$, woraus für J der Wert $\frac{29}{2}$ folgen würde, der in einer f^5 -Konfiguration nicht vorkommt. (Vgl. das Termschema in Fig. 16.) ${}^2O_{\frac{29}{2}}$ ist der Term mit dem höchsten J -Wert dieser Konfiguration. Für die beiden angeregten Terme kämen $J_1 = \frac{9}{2}$ und $J_2 = \frac{17}{2}$ in Frage. Das Fehlen der erlaubten II- und III-Übergänge zu drei weiteren Komponenten mit $\bar{\mu} = \pm \frac{5}{2}$ muß dann durch zu

geringe Intensitäten erklärt werden, ebenso wie das Fehlen von zwei Linien bzw. einer Linie beim Chlorid bzw. Nitrat. Die Gruppe könnte allenfalls noch einem einzigen angeregten Term zugeordnet werden durch die Annahme, daß dieser Term, vielleicht wegen seines hohen J -Wertes, im Äthylsulfat besonders empfindlich auf eine geringe Abweichung von der hohen Symmetrie C_{3h} reagiert und nur eine dreizählige Drehachse „sieht“. Die große Zahl der bei 4,2 °K beobachteten Linien wäre so durch das Fortfallen einiger Übergangsverbote zu erklären. Andererseits müßten dann aber bei 54 °K noch weit mehr Linien beobachtet werden, was gegen diese Annahme spricht. — Beim *Nitrat* liegt die längstwellige Linie 1 auffallend weit von den anderen Linien entfernt. Es besteht durchaus die Möglichkeit, daß sie nicht zur Gruppe N gehört, wenn sie bisher auch nicht anders zu verstehen ist.

Der Zeeman-Effekt dieser Gruppe soll in einer späteren Arbeit untersucht werden.

Zum Schluß danke ich Herrn Professor HELLWEGE für die Anregung und Förderung der Arbeit, Herrn Professor WALTER und Herrn Dipl.-Math. HUND vom Institut für Praktische Mathematik in Darmstadt für ihre Hilfe bei numerischen Rechnungen mit der IBM 650, sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft für apparative Unterstützung.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Hamburg

Die Bedeutung der Hartreeschen Atomeigenfunktionen für die Quantenchemie

Von

KURT ARTMANN*

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 28. November 1957)

Wird die Eigenfunktion des Einzelatoms bei der Berechnung der Molekülenergie durch ein (antisymmetrisiertes) Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen approximiert, so tritt ein vom Kernabstand R abhängiger Fehler — der sog. zwischenatomare Fehler — auf, der bei Verwendung der exakten Atomeigenfunktion identisch 0 wäre. Dieser Fehler wird dann sehr klein, wenn als approximierende Einelektronen-Eigenfunktionen die Hartree-Funktionen benutzt werden. Bei Verwendung von Slater-Funktionen kann dieser Fehler jedoch einen merklichen Bruchteil der Bindungsenergie des Moleküls ausmachen.

§ 1. Die beiden Ausgangspunkte bei der Berechnung der Molekülenergie

In einer vorangegangenen Arbeit¹ wurde ein Verfahren entwickelt (Wechselwirkung ganzer Systeme; abgekürzt W.g.S.), mittels dessen man zu einem konkreten, einfach übersehbaren Ausdruck für die Energie der $[(1s)^2(2s)(u)]$ -Konfiguration des LiH-Moleküls gelangte. Dieses Verfahren berücksichtigte bereits im ersten Schritt die Korrelation der Elektronen des Li-Atoms untereinander vollständig, indem in den ersten Phasen der Rechnung mit der *streng richtigen Eigenfunktion φ des gesamten Einzel-(Li-)Atoms* operiert wurde, ohne daß diese explizit bekannt zu sein brauchte. Diese Eigenfunktion φ wurde erst am Schluß der Rechnung näherungsweise als antisymmetrisiertes Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g dargestellt. Die Erweiterung dieser Methode auf weitere Konfigurationen des LiH-Moleküls sowie auf andere Moleküle ist evident.

Wenn man dagegen von vornherein die Eigenfunktion φ des Einzelatoms durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g approximiert, so erhält man bekanntlich schon bei unendlich großem Kernabstand R , d.h. für die *inneratomare* Energie einen zu hohen Wert. Selbst unter Verwendung der „bestmöglichen“ Einelektronen-

* Der Redaktion fällt die schmerzliche Aufgabe zu, mitzuteilen, daß Professor ARTMANN am 19. Dezember 1957 verstorben ist.

¹ ARTMANN, K.: Z. Physik **149**, 299 (1957).

Eigenfunktionen, nämlich der Hartree- bzw. Hartree-Fock-Funktionen, resultiert bekanntlich für die inneratomare Energie ein Wert, der etwa $1/2$ bis 1% über dem richtigen Wert liegt. Obwohl dieser Fehler prozentual klein ist, hat er, besonders bei höheren Atomen, einen Wert, der weit über der Bindungsenergie des Moleküls liegt. Zwar ist dieser *inneratomare Fehler* teilweise kompensierbar, indem dieser nach einem halbempirischen Verfahren, das auf PAULING² zurückgeht, und kürzlich von MOFFITT³ und HURLEY⁴ ausgebaut worden ist (Intra-Atomic-Correlation-Correction; abgekürzt ICC), von der errechneten Molekülenergie nachträglich abgezogen wird. Bei der Methode der W.g.S. ist eine solche nachträgliche Korrektur dagegen nicht erforderlich.

Bei dieser Methode der ICC bleibt jedoch noch ein zusätzlicher vom Kernabstand R abhängiger Fehler $W(R)$ in der Rechnung stehen. Dieser von der Verwendung der nichtexakten Atomeigenfunktion herrührende sog. *zwischenatomare Fehler* ist zwar schon bei der Behandlung des Li_2 -Moleküls von JAMES⁵ (1934) berücksichtigt worden. Merkwürdigerweise ist diese Fehlerquelle bei der späteren Entwicklung der Quantenchemie in Vergessenheit geraten. Während JAMES diesen Fehler nur im speziellen Fall des Li_2 -Moleküls rein numerisch berücksichtigte, werden wir diesen Fehler im § 2 dieser Arbeit in analytisch übersichtlicher Form als Funktion des Kernabstandes und der in die approximierenden Einelektronen-Eigenfunktionen eingehenden Parameter ausdrücken [Formeln (2.26), (2.29), (2.31)]. Auf diese Weise läßt sich unmittelbar erkennen, daß dieser Fehler nur dann sehr klein ausfallen wird, wenn für die approximierenden Einelektronen-Eigenfunktionen f, g die exakten Lösungen der Hartree-Gleichungen für das Einzelatom verwendet werden. Je mehr die Einelektronen-Eigenfunktionen von den Hartree-Funktionen abweichen, und je größer die Kernladung des Einzelatoms ist, desto größer wird dieser zusätzliche zwischenatomare Fehler ausfallen, der beim Gleichgewichtsabstand durchaus die Größenordnung der Bindungsenergie des Moleküls erreichen kann. Da dieser Fehler bei der Methode der W.g.S. automatisch entfällt, so weist dieser Umstand darauf hin, wie zweckmäßig die Methode der W.g.S. ist.

Wenn man vom trivialen Fall des H_2 -Moleküls absieht, so haben erstmalig HEITLER und RUMER⁶ die Energie eines Moleküls unter Verwendung der exakten Atomeigenfunktionen φ berechnet. Da die

² PAULING, L.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **114**, 181 (1927).

³ MOFFITT, W.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **210**, 245 (1951).

⁴ HURLEY, A. C.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **69**, 49 (1956). — Quarterly Progress Report, Solid-State and Molecular Theory Group Massachusetts Institute of Technology, 15. Januar 1957.

⁵ JAMES, H. M.: J. Chem. Phys. **2**, 794 (1934).

⁶ HEITLER, W., u. G. RUMER: Z. Physik **68**, 12 (1931).

Heitler-Rumerschen Betrachtungen sehr allgemein gehalten waren, so gelangte man damals nicht zu konkreten, einfach übersehbaren Aussagen, die wir in ¹ angestrebt hatten. Der Heitler-Rumersche Gedanke ist dann zunächst von JAMES⁵ und 17 Jahre später von MOFFITT u. Mitarb.⁷ wieder aufgegriffen worden. In der weiteren Ausführung seiner Betrachtungen hat MOFFITT jedoch den Heitler-Rumerschen Ausgangspunkt verlassen und operiert schon im 1. Schritt mit der Näherungsdarstellung des Atoms als Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g , wobei zum Schluß der Rechnung zwar die auf S. 574 besprochene *inneratomare* Korrektur eingeführt wird, aber der zwischenatomare Fehler unberücksichtigt bleibt.

Am Beispiel des Ionenzustandes $H-H^+$ des H_2 -Moleküls hat HURLEY⁴ verständlich gemacht, daß es beim Verfahren der ICC am richtigsten ist, die im Rahmen seiner Theorie „bestmögliche“ Einelektronen-Eigenfunktion des negativen H-Ions zu benutzen. Das war dort eine Wasserstoff-Funktion mit der Kernladung $Z = 0,6875$. Vom Standpunkt unserer viel allgemeiner gehaltenen Betrachtungen bedeutet dies, daß beim Hurleyschen Beispiel der zwischenatomare Fehler zwar sehr klein gehalten war, allerdings durch Verwendung der Hartree-Funktion des H^- [vgl. (3.17)] noch etwas verkleinert werden könnte.

In § 3 werden wir uns ferner mit der *Hermitizität des Übergangselements* zwischen zwei verschiedenen Konfigurationen eines Moleküls beim Rechenverfahren der W.g.S. befassen, und zwar am Beispiel der bereits in ¹ behandelten homöopolaren Konfiguration $\Psi_{\text{hom}} [(1s)^2(2s)(u)]$ und heteropolaren Konfiguration $\Psi_{\text{het}} [(1s)^2(\bar{u})^2]$ des LiH-Moleküls. Bezeichnet \underline{H} den in (I; 2.7)* angegebenen Hamilton-Operator des gesamten Moleküls, so ist sicher die Differenz

$$D = \int \Psi_{\text{hom}} \underline{H} \Psi_{\text{het}} d\tau - \int \Psi_{\text{het}} \underline{H} \Psi_{\text{hom}} d\tau \quad (1.1)$$

exakt gleich Null, wenn für Ψ_{hom} und Ψ_{het} irgendwelche Funktionen eingesetzt werden, die im Unendlichen hinreichend stark verschwinden.

Bei der Methode der W.g.S. wird nun der Hamilton-Operator \underline{H} zunächst in einen inneratomaren und einen zwischenatomaren Operator zerlegt, deren jeder in den beiden Termen von (1.1) jedoch aus Zweckmäßigkeitsgründen verschieden ist [vgl. (2.1), (3.5)]. Sodann werden in den (voneinander verschiedenen) inneratomaren Anteilen die streng richtigen Atomeigenfunktionen φ eingesetzt, in den (voneinander verschiedenen) zwischenatomaren Anteilen jedoch die Näherung durch Produkteigenfunktionen f, g . Infolgedessen ist die Differenz D (1.1) nicht mehr streng Null. Wir werden jedoch zeigen, daß diese Differenz

* Die Formelnummern von ¹) werden hier durch eine vorgesetzte I gekennzeichnet.

⁷ Vgl. Fußnote 3 und 4 der S. 574.

D *praktisch* dann verschwindet, wenn die zwischenatomaren Anteile durch die Hartreeschen Atomeigenfunktionen approximiert werden.

Um das Auftreten eines nichthermiteschen Übergangselements beim Verfahren der ICC zu vermeiden, mußten MOFFITT und HURLEY ihren Hamilton-Operator etwas modifizieren. Wir werden sehen, daß unsere Übergangselemente nur dann mit denen von MOFFITT und HURLEY übereinstimmen, wenn als Einelektronen-Eigenfunktionen die Hartreeschen verwendet werden.

§ 2. Berechnung des zwischenatomaren Fehlers $W(R)$

a) *Zerlegung des Hamilton-Operators, erläutert an der homöopolaren Konfiguration $[(1s)^2(2s)(u)]$ des LiH-Moleküls.* Der Einfachheit halber führen wir die Berechnung des zwischenatomaren Fehlers an einem konkreten Beispiel, nämlich dem des LiH-Moleküls durch. Die Verallgemeinerung auf andere Moleküle ist evident. Zum Verständnis der folgenden Rechnungen wird daher die Kenntnis von¹ vorausgesetzt. Die im § 1 dieser Arbeit skizzierte Problemstellung legt es nahe, nach dem Vorbild von JAMES⁵ den gesamten Hamilton-Operator \underline{H} (I; 2.7) des LiH-Moleküls, der zufolge (I; 2.8) auf die Funktion $\varphi_{3;12}$ anzuwenden ist, in 3 Teile zu zerlegen, nämlich:

$$\underline{H} = \underline{H}^{(\text{Li})} + \underline{H}^{(\text{H})} + \underline{H}^{(\text{Li}, \text{H})}. \quad (2.1)$$

Hierbei ist der inneratomare Operator des Li-Atoms

$$\underline{H}^{(\text{Li})} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 \Delta_i - 3 \sum_{i=1}^3 \frac{1}{r_i} + \sum_{i < k=1}^3 \frac{1}{r_{ik}} \quad (2.2)$$

mit (I; 2.5) identisch. Ferner bedeutet

$$\underline{H}^{(\text{H})} = -\frac{1}{2} \Delta_4 - \frac{1}{r_{u_1}} \quad (2.3)$$

entsprechend (I; 2.10) den inneratomaren Operator des H-Atoms.

$$\underline{H}^{(\text{Li}, \text{H})} = \frac{3}{R} - \frac{3}{r_4} - \frac{1}{r_{u_1}} - \frac{1}{r_{u_2}} - \frac{1}{r_{u_3}} + \frac{1}{r_{14}} + \frac{1}{r_{24}} + \frac{1}{r_{34}} \quad (2.4)$$

ist der zwischenatomare Operator, der in (I; 2.11) als *effektiver Hamilton-Operator* bezeichnet wurde.

Der Erwartungswert der Energie des homöopolaren Zustandes $[(1s)^2(2s)(u)]$ des LiH-Moleküls ist dann entsprechend (I; 2.6)

$$E_{\text{hom}} = E_{\text{hom}}^{(\text{Li})} + E_{\text{hom}}^{(\text{H})} + E_{\text{hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}, \quad (2.5)$$

wobei

$$E_{\text{hom}}^{(\text{Li}), (\text{H}), (\text{Li}, \text{H})} = \frac{\int \Psi_{\text{hom}} \underline{H}^{(\text{Li}), (\text{H}), (\text{Li}, \text{H})} \Psi_{\text{hom}} d\tau}{\int \Psi_{\text{hom}}^2 d\tau} \quad (2.6)$$

mit Ψ_{hom} aus (I; 2.3). Den Ausdruck $E_{\text{hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ hatten wir in (I; 2.12) bis (I; 2.21) explizit angegeben, nachdem $\varphi_{3;12}$ mittels (I; 2.2) durch das

Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g approximiert wurde. An diesem Ausdruck wird hier nichts geändert. Ferner war unter Verwendung von (I; 2.10)

$$E_{\text{hom}}^{(\text{H})} = E^{(\text{H})} = -\frac{1}{2} \quad (2.7)$$

die inneratomare Energie des H-Atoms.

Bei der Berechnung von $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ hatten wir bei der Methode der W.g.S. in (2.6), (I; 2.3) für $\varphi_{3;12}$ die exakte Li-Eigenfunktion (I; 2.4) eingesetzt mit dem Ergebnis

$$E_{\text{hom}}^{(\text{Li})} = E^{(\text{Li})} \quad (2.8)$$

= der gesamten Energie des Li-Atoms, die trivialerweise vom Kernabstand R unabhängig sein muß.

b) *Der zwischenatomare Fehler $W(R)$ der $[(1s)^2(2s)(u)]$ -Konfiguration des LiH-Moleküls.* Das Problem dieses Abschnitts lautet: Welcher Wert für die inneratomare Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ ergibt sich, wenn in (2.6), (I; 2.3) nicht wie bei der W.g.S. für $\varphi_{3;12}$ die streng richtige Atomeigenfunktion (I; 2.4) eingesetzt wird, sondern wenn man nach der üblichen Methode verfährt; d.h. $\varphi_{3;12}$ gemäß (I; 2.2) durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g approximiert? Es wird sich ergeben, daß die inneratomare Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ dann vom Kernabstand R abhängen wird! Dieses unsinnige Ergebnis weist auf die Notwendigkeit hin, Moleküle nach der Methode der W.g.S. zu behandeln.

Entsprechend (I; 2.9) erhält man für den inneratomaren Anteil der Molekülenergie den Ausdruck

$$E_{\text{hom}}^{(\text{Li})} = \frac{C^{(\text{Li})} + A^{(\text{Li})} + \epsilon^{(\text{Li})}}{c + a + b}, \quad (2.9)$$

worin c, a, b mit den Werten (I; 2.8) identisch sind, und $C^{(\text{Li})}, A^{(\text{Li})}, B^{(\text{Li})}$ aus den entsprechenden Größen C, A, B (I; 2.8) hervorgehen, indem das dortige \underline{H} durch unseren inneratomaren Operator des Li-Atoms $\underline{H}^{(\text{Li})}$ (2.2) ersetzt wird. Setzt man ferner programmgemäß für die $\varphi_{i;jk}$ die Approximation (I; 2.2) durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen f, g ein, so erhält man schließlich

$$\left. \begin{aligned} 2C^{(\text{Li})} &= \int u_4 \varphi_{3;12} \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 \varphi_{3;12} d\tau \\ &= 2 \int u_4 f_3 f_1 g_2 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau - 2 \int u_4 f_3 f_2 g_1 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau \end{aligned} \right\} \quad (2.10)$$

$$\left. \begin{aligned} A^{(\text{Li})} &= \int u_1 \varphi_{2;43} \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 \varphi_{3;12} d\tau \\ &= \int u_1 f_2 f_4 g_3 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau - \int u_1 f_2 f_3 g_4 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau \\ &\quad - \int u_2 f_1 f_4 g_3 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau + \int u_2 f_1 f_3 g_4 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau \end{aligned} \right\} \quad (2.11)$$

$$\left. \begin{aligned} 2B^{(\text{Li})} &= \int u_3 \varphi_{4;21} \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 \varphi_{3;12} d\tau \\ &= -2 \int u_3 f_4 f_1 g_2 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau + 2 \int u_3 f_4 f_2 g_1 \underline{H}^{(\text{Li})} u_4 f_3 f_1 g_2 d\tau. \end{aligned} \right\} \quad (2.12)$$

Genau wie in den a, b , (I; 2.8) tritt auch in den $A^{(\text{Li})}$, $B^{(\text{Li})}$ mindestens einmal das Produkt einer H -Funktion u_i mit einer gleichindizierten Li-Funktion f_i bzw. g_i auf. Da diese Produkte bei unendlich großem Kernabstand verschwinden, so ist

$$\left. \begin{aligned} a(\infty) &= b(\infty) = 0 \\ A^{(\text{Li})}(\infty) &= B^{(\text{Li})}(\infty) = 0. \end{aligned} \right\} \quad (2.13)$$

Nach (I; 2.13) ist $c = i$. Ferner enthält $\underline{H}^{(\text{Li})}$ (2.2) die Koordinaten des Elektrons 4 nicht, so daß in (2.10), wo sich der Index 4 nur am u befindet, die Integration über $d\tau_4$ den Faktor 1 ergibt. Da ferner in $\underline{H}^{(\text{Li})}$ nur *inneratomare* Abstände auftreten, so ist $C^{(\text{Li})}$ (2.10) unabhängig vom Kernabstand R , und zwar gleich der (inneren) Energie des Li-Atoms in der Näherung, daß dieses durch Einelektronen-Eigenfunktionen approximiert wird. Wegen (2.13) ist daher

$$E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}(\infty) = C^{(\text{Li})} < 0. \quad (2.14)$$

Wegen des Variationsprinzips liegt $C^{(\text{Li})}$ sicher höher als der mit der exakten Atomeigenfunktion errechnete Wert $E^{(\text{Li})}$ (I; 2.4). Der genaue Wert dieser Energiedifferenz interessiert hier nicht, weil dieser nach dem Verfahren der ICC nachträglich korrigierbar wäre. Der uns interessierende zwischenatomare Fehler $W(R)$, der durch die ungenaue Berechnung der inneratomaren Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ des gesamten Moleküls infolge Verwendung der nichtexakten Li-Funktion in die Rechnung hineinkommt, ist ersichtlich die Differenz der inneratomaren Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ bei $R = \infty$ und dieser Energie bei endlichem R :

$$W(R) = E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}(R) - E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}(\infty) \quad (2.15)$$

mit $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}(R)$ aus (2.9) und $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}(\infty)$ aus (2.14). Setzt man hierin die Werte (I; 2.14), (I; 2.15) ein, so ergibt sich

$$W(R) = \frac{(A^{(\text{Li})} - S_{ug}^2 C^{(\text{Li})}) + (B^{(\text{Li})} + S_{uf}^2 C^{(\text{Li})})}{1 + S_{ug}^2 - S_{uf}^2} \quad (2.16)$$

mit $C^{(\text{Li})}$, $A^{(\text{Li})}$, $B^{(\text{Li})}$ aus (2.10), (2.11), (2.12).

Dieser Ausdruck wäre nach dem Vorangegangenen bei Verwendung der exakten Atomeigenfunktion (I; 2.4) identisch Null. Bei der jetzigen Approximation der Li-Eigenfunktion $\varphi_{i;jk}$ durch den Produktansatz verschwindet jedoch $W(R)$ nicht identisch bei endlichem R . Um die im Zähler von (2.16) auftretenden Größen zu berechnen, hat man in (2.10), (2.11), (2.12) für $\underline{H}^{(\text{Li})}$ den Wert (2.2) einzusetzen. Die weiteren Rechnungen gestalten sich dann übersichtlich, wenn man die Voraussetzung macht, die (zunächst beliebig wählbaren) Li-Eigenfunktionen

f_i, g_i genügen einer Differentialgleichung vom Schrödinger-Typ, nämlich

$$-\frac{1}{2}\Delta_i f_i + V_i^{(f)} f_i = E^{(f)} f_i \quad (2.17)$$

$$-\frac{1}{2}\Delta_i g_i + V_i^{(g)} g_i = E^{(g)} g_i. \quad (2.18)$$

Diese Voraussetzung bedeutet keinerlei Einschränkung. Denn bei vorgegebenen Funktionen f_i, g_i , also auch vorgegebenen Funktionen $\Delta_i f_i, \Delta_i g_i$ läßt sich (2.17) bzw. (2.18) unmittelbar nach den durch diese Formeln eingeführten sog. „Approximationspotentialen“ $V_i^{(f)}, V_i^{(g)}$, die der Allgemeinheit halber für f_i und g_i verschieden angenommen wurden, auflösen.

Die beiden häufigsten in der Quantenchemie auftretenden Atom-Eigenfunktionen bzw. deren Potentiale V_i sind a) die Slater-Funktionen mit Approximationspotentialen vom Typ

$$\{V_i\}_{\text{Slater}} = \frac{n'(n' - 1)}{2r_i^3} - \frac{Z'}{r_i} \quad (2.19)$$

(Z' = effektive Kernladungszahl), b) die Lösungen der Hartree-Gleichungen des Li-Atoms mit den Potentialen

$$\{V_i^{(f)}\}_{\text{Hartree}} = -\frac{3}{r_i} + \int \frac{f_j^2 + g_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \quad (2.20)$$

$$\{V_i^{(g)}\}_{\text{Hartree}} = -\frac{3}{r_i} + 2 \int \frac{f_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \quad (2.21)$$

[vgl. hierzu (I; 2.16), (I; 2.21), wo hierfür die Bezeichnungen $-Q_{ff}(r_i)$ bzw. $-Q_{fg}(r_i)$ verwendet wurden].

Im Falle der Hartree-Funktionen sind (2.17), (2.18) zwar keine Differentialgleichungen, sondern *Integrodifferentialgleichungen*. Bekanntlich sind die f_i und g_i dann nicht streng aufeinander orthogonal, wie wir in ¹ stets angenommen hatten. Da aber die Funktionen f_i und g_i , die zu zwei verschiedenen Hauptquantenzahlen gehören, ihre wesentlich von 0 verschiedenen Werte in weit von einander entfernten Raumgebieten annehmen, so ist die Abweichung der beiden Hartree-Funktionen f_i und g_i von der Orthogonalität so gering, daß sie im folgenden praktisch vernachlässigt werden darf⁸.

Drückt man in den Formeln (2.10), (2.14), (2.12) die Δ -Operatoren des $H^{(\text{Li})}$ -Operators (2.2) mittels (2.17), (2.18) durch die Approximationspotentiale $V_i^{(f)}, V_i^{(g)}$ aus, so erhält man nach elementarer Zwischenrechnung für die beiden im Zähler von (2.16) auftretenden Summanden die folgenden Werte:

$$\left. \begin{aligned} A^{(\text{Li})} - S_{ug}^2 C^{(\text{Li})} &= S_{ug} \int (S_{ug} g_i^2 - g_i u_i) \times \\ &\times \left[V_i^{(g)} + \frac{3}{r_i} - 2 \int \frac{f_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \right] d\tau_i + \\ &+ \eta^{(\text{Li})} + (S_{uf}^2 + S_{ug}^2) \cdot \int \frac{f_i g_i f_j g_j}{r_{ij}} d\tau_i d\tau_j, \end{aligned} \right\} \quad (2.22)$$

⁸ Vgl. HELLMANN, H.: Einführung in die Quantenchemie, S. 95. Leipzig u. Wien: Franz Deuticke 1937.

wobei

$$\eta^{(\text{Li})} = S_{ug} \int f_i g_i \left[S_{uf} \left(V_i^{(g)} + \frac{3}{r_i} \right) - S_{uf} \int \frac{f_j^2}{r_{ij}} d\tau_j - \int \frac{u_j f_j}{r_{ij}} d\tau_j \right] d\tau_i + \left. \begin{aligned} &+ S_{uf} \int f_i g_i \left[S_{ug} \left(V_i^{(f)} + \frac{3}{r_i} \right) - S_{ug} \int \frac{f_j^2}{r_{ij}} d\tau_j - \int \frac{u_j g_j}{r_{ij}} d\tau_j \right] d\tau_i \end{aligned} \right\} \quad (2.23)$$

$$B^{(\text{Li})} + S_{uf}^2 C^{(\text{Li})} = - S_{uf} \int (S_{uf} f_i^2 - u_i f_i) \left[V_i^{(f)} + \frac{3}{r_i} - \int \frac{f_j^2 + g_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \right] d\tau_i. \quad (2.24)$$

Um zu einem übersichtlichen Ausdruck für $W(R)$ zu gelangen, sei bemerkt, daß das Produkt der H -Funktion u_i mit der gleichindizierten $2s$ -Li-Funktion g_i erheblich größer ist als die Produkte $u_i \cdot f_i$ bzw. $f_i \cdot g_i$ (f_i ist die $1s$ -Eigenfunktion des Li). Denn die Funktionen u_i und f_i bzw. f_i und g_i besitzen ihre größten Werte in weit voneinander entfernten Raumgebieten, während u_i und g_i ihre maximalen Werte im gleichen Raumgebiet besitzen. Berücksichtigt man ferner, daß in (2.22), (2.23), und (2.24) stets das Produkt *zweier* „großer“ Produkte oder das Produkt *zweier* „kleiner“ Produkte vorkommt, so ist es zulässig, im ersten Schritt in (2.22), (2.23) und (2.24) die Glieder, in denen die *kleinen* Produkte vorkommen, zu streichen. [Im LiH ist am experimentellen Kernabstand ($R=3$) und unter Verwendung der üblichen Slater-Funktionen numerisch etwa $S_{uf}:S_{ug} \approx \frac{1}{7}$.] Dann ist insgesamt nur der erste Term von (2.22) beizubehalten, und im Nenner von (2.16) $S_{uf}=0$ zu setzen. Man erhält so für den inneratomaren Fehler (2.16) der $[(1s)^2(2s)(u)]$ -Konfiguration des LiH-Moleküls in guter Näherung

$$W(R) \cdot (1 + S_{ug}^2) = S_{ug} \cdot \int (S_{ug} g_i^2 - g_i u_i) \left[V_i^{(g)} + \frac{3}{r_i} - 2 \int \frac{f_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \right] d\tau_i. \quad (2.25)$$

Oder wegen der Definition (2.21) des Hartree-Potentials der Funktion g_i den Wert

$$W(R) \cdot (1 + S_{ug}^2) = S_{ug} \cdot \int (S_{ug} g_i^2 - g_i u_i) [V_i^{(g)} - \{V_i^{(g)}\}_{\text{Hartree}}] d\tau_i. \quad (2.26)$$

Da $S_{ug} \rightarrow 0$ für $R \rightarrow \infty$, so geht $W(R) \rightarrow 0$ für $R \rightarrow \infty$, wie es sein muß. Für endliche R hängt $W(R)$ entscheidend von der Wahl der verwendeten Li-Eigenfunktion g_i , d.h. von dem zufolge (2.18) zugeordneten Approximationspotential $V_i^{(g)}$ ab. Wenn für dieses Potential der spezielle Wert $\{V_i^{(g)}\}_{\text{Hartree}}$ genommen wird, d.h. wenn g_i die exakte Lösung der Hartree-Gleichung (2.18) des Li-Atoms ist, so verschwindet die eckige Klammer in (2.26) identisch (d.h. für alle r_i). Deshalb ist in diesem Spezialfall der zwischenatomare Fehler $W(R)$ identisch Null. Da $u_i \cdot g_i$ und daher auch S_{ug} vom Kernabstand R abhängen, so ist andern-

falls die rechte Seite von (2.25) bzw. (2.26) eine nicht identisch verschwindende Funktion des Kernabstandes R .

Setzt man z. B. in (2.25) die 2s-Slater-Funktion des Li-Atoms

$$g_i = \int \frac{\alpha^5}{3\pi} r_i \cdot e^{-\alpha r_i} \quad \left(\alpha = \frac{1}{2} Z' \right) \quad (2.27)$$

mit $\alpha = 0,65$, also für $V_i^{(g)}$ den Wert (2.19) mit $n' = 1$, $Z' = 1,30$ ein und ersetzt in guter Näherung $2 \int \int r_{ij}^2 d\tau_j$ durch $2/r_i$, so sind alle in (2.25) auftretenden Integrale — allerdings nicht in übersichtlicher Form — elementar auswertbar. Am beobachteten Kernabstand $R = 3$ des LiH erhält man dann einen numerischen Wert für $W(3)$, der kleiner als 0,1 eV ist.

Das hat folgenden Grund: Obwohl nach Ausmultiplikation der beiden Klammern von (2.25) das einzelne Glied — wie beispielsweise das Glied $S_{ug}^2 \cdot \int g_i^2 r_i d\tau_i$ — von der Größenordnung $0,2 \cdot 20 \text{ eV} = 4 \text{ eV}$ ist, heben sich die einzelnen Glieder in der schließlich erhaltenen Summe weitgehendst gegenseitig fort, weil die runde Klammer in (2.25) wegen (I; 2.12) im Mittel verschwindet:

$$\int (S_{ug} g_i^2 - g_i u_i) d\tau_i = 0.$$

Die Tatsache, daß $W(3)$ jedoch so *extrem klein* ausfällt, beruht vermutlich auf den speziellen Annahmen $\alpha = 0,65$, $R = 3$. Mit anderen numerischen Annahmen könnte $W(R)$ vermutlich erheblich größer ausfallen.

c) *Der zwischenatomare Fehler des Li₂-Moleküls.* Um diese Vermutung zu bestätigen, betrachten wir ein anderes Molekül, bei dem a) praktisch die gleichen Verhältnisse vorliegen wie bei LiH, und b) sich der zwischenatomare Fehler $W(R)$ in übersichtlicher analytischer Form als Funktion des Kernabstandes R und der Abschirmungskonstanten α der 2s-Li-Funktion (2.27) darstellen läßt. Dieses bereits von JAMES⁵ behandelte Molekül ist Li₂, bei welchem an die Stelle der H-Eigenfunktion u_i die 2s-Eigenfunktion des zweiten Li-Atoms tritt. Diese wird in diesem Abschnitt mit u_i bezeichnet und lautet explizit bei Approximation durch eine Slater-Funktion entsprechend (2.27)

$$u_i = \int \frac{\alpha^5}{3\pi} r_{u_i} \cdot e^{-\alpha r_{u_i}} \quad (2.28)$$

Die Tatsache, daß das zweite Li-Atom im Li₂ im Gegensatz zum H-Atom im LiH zusätzlich zwei spinverschiedene 1s-Elektronen besitzt, also bei Li₂ ein *Sechselektronenproblem* vorliegt, hat keinerlei Einfluß auf die Berechnung des zwischenatomaren Fehlers, wenn auch hier in zulässiger Näherung in allen Integralen die Produkte mit den 1s-Funktionen wegen ihrer Kleinheit fortgelassen werden. Außer (2.28) besteht jetzt

wie man sich leicht überzeugt, gegenüber LiH die einzige Modifikation in der Anbringung eines Faktors 2 auf der rechten Seite von (2.25), (2.26). Dieser rührt davon her, daß jetzt *beide* Li-Atome zum zwischenatomaren Fehler des Li_2 -Moleküls beitragen.

Ersetzt man auch jetzt in guter Näherung $\int f_i^2/r_{ij} d\tau_j$ durch $1/r_i$ und setzt ferner in (2.25) für $V_i^{(g)}$ den Wert (2.19) (mit $n'=1$; $Z'=2\alpha$) mit zunächst beliebigem α ein, so nimmt (2.25) nach Anbringung des Faktors 2 die Form an:

$$W(R) \cdot (1 + S_{ug}^2) = 2 S_{ug} \cdot \int (S_{ug} g_i^2 - g_i u_i) \cdot \left[\frac{1}{r_i^2} - \frac{2\alpha - 1}{r_i} \right] d\tau_i. \quad (2.29)$$

Setzt man hierin ferner für g_i und u_i die Slater-Funktionen (2.27), (2.28) ein, so läßt sich das Integral (2.29) nach Ausmultiplikation der beiden Klammern und nach Einführung der Abkürzung

$$x = \alpha R \quad (2.30)$$

in der folgenden übersichtlichen Form auswerten:

$$27 \cdot W(x, \alpha) (1 + S_{ug}^2) = 2 S_{ug} \alpha e^{-x} x^2 \left[-2\alpha + \alpha x + \frac{2}{5} \left(\frac{3}{4} - \alpha \right) x^2 \right]. \quad (2.31)$$

Hierbei beträgt der explizite Wert des Überlappungsintegrals S_{ug} ⁹

$$S_{ug} = \left(1 + x + \frac{4}{9} x^2 + \frac{1}{9} x^3 + \frac{1}{45} x^4 \right) e^{-x}. \quad (2.32)$$

Die Formel (2.31) liefert den zwischenatomaren Fehler $W(R)$ des Li_2 -Moleküls als Funktion von x und der Abschirmzahl α der Slater-Funktion; oder wegen (2.30) auch als Funktion des Kernabstandes R und α in atomaren Einheiten. Läßt man auf der linken Seite von (2.31) den Faktor 27 fort, so erhält man (praktisch) $W(R)$ in eV.

In Fig. 1 ist der zwischenatomare Fehler W auf Grund von (2.31) als Funktion von x für vier verschiedene Werte von α aufgezeichnet. Nach dem Slaterschen Rezept wäre $\alpha=0,65$ zu wählen. Die zu diesem α -Wert gehörige Fehlerkurve $W(x, \alpha)$ liegt so wenig unterhalb der eingezeichneten, zu $\alpha=0,55$ gehörigen Kurve, daß zeichnerisch praktisch keinerlei Unterschiede bestehen. Am experimentellen Kernabstand $R=5$ des Li_2 -Moleküls ($x=0,65 \cdot 5=3,25$) — d.h. am Minimum der gesamten Energiekurve $E(R)$ des Moleküls — besitzt $W(x, \alpha)$ nach Fig. 1 ein *Maximum* der Höhe 0,3 eV, das etwa 28% der beobachteten Bindungsenergie (1,1 eV) des Li_2 -Moleküls ausmacht. Der zwischenatomare Fehler täuscht also hier eine um 28% zu kleine Bindungsenergie vor.

Nach (2.31) bzw. Fig. 1 nimmt $W(x, \alpha)$ für $\alpha < 12/11$ in gewissen R - bzw. x -Bereichen positive Werte an. Für $\alpha > 12/11$ ist $W(x, \alpha)$ für

⁹ Vgl. HELLMANN, H.: Einführung in die Quantenchemie, S. 337—338. Leipzig u. Wien: Franz Deuticke 1937.

alle x (bzw. R) negativ. Für $\alpha > 12/11$ täuscht der zwischenatomare Fehler daher eine zu große Bindungsenergie vor.

Eine weitere Diskussion des zwischenatomaren Fehlers $W(R)$ erübrigt sich, da wir der Auffassung sind, daß dieser bei anderer Wahl des Ausgangspunktes der gesamten Berechnung (nämlich der Methode der W.g.S.) völlig entfällt. Es sollte an Hand von (2.31) bzw. Fig. 1 nur einmal illustriert werden, welche merkwürdige zusätzliche, vom Kernabstand abhängige Energiewerte $W(R)$ vorgetäuscht werden können, wenn die Atomeigenfunktion von vornherein durch das Produkt von Ein-elektronen-Eigenfunktionen approximiert wird.

d) *Verallgemeinerung auf Moleküle mit höheren Atomen.*

Wir gehen jetzt vom LiH zu Molekülen XH mit höheren Atomen X (= Na, K, Cs) über, bei denen das einwertige X-Atom außer der bindenden Eigenfunktion g_i nicht nur zwei, sondern $2N$ spinverschiedene Elektronen auf den N verschiedenen inneren Bahnen $f_i^{(1)}, f_i^{(2)}, \dots, f_i^{(N)}$ besitzt. Der Kern des X-Atoms ist dann $(2N + 1)$ -fach geladen. Eine sehr einfache Verallgemeinerung der Betrachtungen von b) lehrt,

daß man mit den gleichen Vernachlässigungen wie auf S. 580 für den zwischenatomaren Fehler des XH-Moleküls wiederum den Wert (2.26) erhält mit der einzigen Modifikation, daß für $\{V_i^{(e)}\}_{\text{Hartree}}$ das Hartree-Potential der g -Funktion des X-Atoms einzusetzen ist, also der Wert

$$\{V_i^{(e)}\}_{\text{Hartree}} = -\frac{2N+1}{r_i} + 2 \sum_{j=1}^N \int \frac{[f_j^{(r)}]^2}{r_{ij}} d\tau_j. \quad (2.33)$$

Man versteht so, daß in Molekülen mit höheren Atomen ein erheblich größerer Wert für den zwischenatomaren Fehler resultieren kann als bei LiH bzw. Li₂: Denn bei einer größeren Anzahl N von inneren Schalen stehen in der eckigen Klammer von (2.26) viel größere Werte als im Falle $N=1$. So setzt sich diese Klammer bei Verwendung von Slater-Funktionen (2.19) und wegen (2.33) bei sehr kleinem r_i aus der Summe

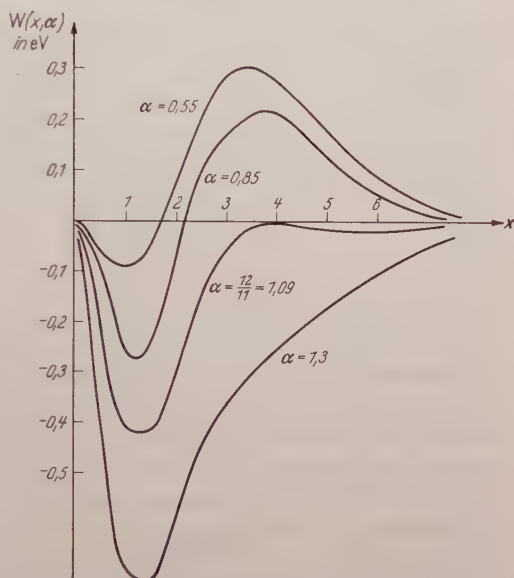


Fig. 1. Der zwischenatomare Fehler $W(x, \alpha)$ des Li₂-Moleküls infolge Verwendung von Slater-Funktionen auf Grund von (2.31)

zweier großer positiver Glieder zusammen, nämlich aus

$$\frac{n'(n'-1)}{r_i^2} + \frac{2N+1}{r_i}.$$

Wenn sich auch der zwischenatomare Fehler in der Formel (2.26) durch Verwendung von Hartree-Funktionen völlig ausschalten läßt, so bleibt auch bei Verwendung von Hartree-Funktionen stets noch ein kleiner Fehler in den (hier zunächst gestrichenen) *mehrfachen* Austauschintegralen nach, wie im Falle des LiH in den Gliedern der zweiten Zeile der rechten Seite von (2.22). (Das dortige $\eta^{(\text{Li})}$ ist ein dreifaches, der folgende Term ein vierfaches Austauschintegral.) Diese höheren Austauschintegrale lassen sich im allgemeinen auch durch Hartree-Funktionen nicht exakt zu 0 machen. Wenn diese höheren Austauschintegrale auch bei den hier behandelten Molekültypen sehr klein blieben, so daß sie mit vollem Recht in erster Näherung vernachlässigt werden durften, so können sie bei anderen Molekültypen stärker ins Gewicht fallen, insbesondere bei Molekülen mit mehr als zwei Atomen.

§ 3. Die Hermitizität von Übergangselementen

a) *Kritik der Methode der W.g.S.* Die Methode der W.g.S. krankt insofern an einer kleinen Inkonsistenz, als sie im inneratomaren Anteil $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ die exakte Atomeigenfunktion $\varphi_{3;12}$ (I; 2.4), im zwischenatomaren Energieanteil $E_{\text{hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ jedoch die Approximation (I; 2.2) von $\varphi_{3;12}$ durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen eingesetzt wird. Zu dieser Inkonsistenz ist man in der Praxis so lange gezwungen, als — abgesehen von einigen wenigen Ausnahmefällen¹⁰ — kein Näherungswert für die exakte Atomeigenfunktion bekannt ist, die über den Produktansatz hinausgeht¹¹. Daß diese Inkonsistenz bei Berechnung der Energie (2.6) der homöopolaren Konfiguration des LiH vermutlich praktisch keinerlei Bedeutung haben wird, liegt daran, daß die inneratomare Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li})}$ bei weitem die zwischenatomare Energie $E_{\text{hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ überwiegt, und daß deshalb Entsprechendes vermutlich auch für die zugehörigen Fehler gelten wird, die durch Verwendung der nichtexakten Li-Funktion in die Rechnung hineinkommen.

b) *Berechnung des Übergangselements nach der Methode der W.g.S.* Die soeben geschilderte Inkonsistenz hat jedoch noch eine Auswirkung auf die Übergangselemente zwischen zwei verschiedenen Konfigurationen eines Moleküls. Wir erläutern dies am Übergangselement zwischen

¹⁰ BETHE, H. A., u. E. E. SALPETER im Handbuch der Physik, Bd. XXXV, S. 238—242. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1957.

¹¹ Die Näherungsverfahren zur Bestimmung der Korrelationsfunktionen sind zusammenfassend dargestellt von P. O. LÖWDIN und H. YOSHIKUMI in einer Research Note der Quantum Chemistry Group Uppsala, Schweden vom 21. Juni 1957. Vgl. auch LÖWDIN, P. O.: Phys. Rev. **97**, 1509 (1955).

dem homöopolaren Zustand Ψ_{hom} (I; 2.3) und heteropolaren Zustand Ψ_{het} (I; 4.1) des LiH-Moleküls. Mit dem Hamilton-Operator des gesamten Moleküls H (I; 2.7) ist ersichtlich

$$\frac{1}{8} H_{\text{hom, het}} = \frac{1}{8} \int \Psi_{\text{hom}} \underline{H} \Psi_{\text{het}} d\tau = \int u_4 q_{3;12} \underline{H} F_{13} U_{24} d\tau - \left. \begin{aligned} & - \int u_4 q_{3;12} \underline{H} F_{14} U_{23} d\tau \end{aligned} \right\} \quad (3.1)$$

$$\frac{1}{8} H_{\text{het, hom}} = \frac{1}{8} \int \Psi_{\text{het}} \underline{H} \Psi_{\text{hom}} d\tau = \int F_{13} U_{24} \underline{H} u_4 q_{3;12} d\tau - \left. \begin{aligned} & - \int F_{14} U_{23} \underline{H} u_4 q_{3;12} d\tau \end{aligned} \right\} \quad (3.2)$$

Wir beschränken uns der Einfachheit halber nur auf den 1. Summanden der rechten Seite von (3.1) und (3.2), weil dieser erheblich größer ist als der zweite. Denn im ersten Summanden vertauscht ein, im zweiten Summanden vertauschen drei Elektronenpaare ihre Plätze zwischen Li und H. Wir führen nun für die ersten Summanden die Abkürzungen ein

$$h_{\text{hom, het}} = \int u_4 q_{3;12} \underline{H} F_{13} U_{24} d\tau \quad (3.3)$$

$$h_{\text{het, hom}} = \int F_{13} U_{24} \underline{H} u_4 q_{3;12} d\tau. \quad (3.4)$$

Da \underline{H} ein hermitischer Operator ist, so ist offensichtlich $h_{\text{hom, het}} = h_{\text{het, hom}}$ [entsprechend $H_{\text{hom, het}} = H_{\text{het, hom}}$], wenn in (3.3), (3.4) [(3.1), (3.2)] beliebige Funktionen eingesetzt werden. Um nun trotz Unkenntnis der exakten Atomeigenfunktionen F_{13} , U_{24} , $q_{3;12}$ zu einfach übersehbaren Endergebnissen zu gelangen, werden beim Verfahren der W.g.S. in (3.3) etwas andere Werte für die F_{13} , U_{24} , $q_{3;12}$ eingesetzt als in (3.4). Infolgedessen sind die beiden Ausdrücke (3.3) und (3.4) nicht streng einander gleich. Wir fragen uns, wie groß ihre Differenz

$$\delta = h_{\text{hom, het}} - h_{\text{het, hom}} \quad (3.5)$$

sein wird. Zu diesem Zweck berechnen wir zunächst (3.3) und (3.4) einzeln nach der Methode der W.g.S.:

In (3.4), wo der \underline{H} -Operator auf die *homöopolare* Funktion $u_4 \cdot q_{3;12}$ angewendet wird, zerlegen wir \underline{H} genau wie im § 2 bei der Berechnung des Erwartungswertes des homöopolaren Zustandes zufolge (2.1) bis (2.4). In (3.3), wo \underline{H} jedoch auf die *heteropolare* Funktion $F_{13} \cdot U_{24}$ angewendet wird, zerlegen wir dagegen zweckmäßigerweise \underline{H} in einer dem § 4 von¹ entsprechenden Form, nämlich:

$$\underline{H} = \underline{H}^{(\text{Li}^+)} + \underline{H}^{(\text{H}^-)} + \underline{H}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)} \quad (3.6)$$

wobei entsprechend (I; 4.4), (I; 4.5), (I; 4.6) bedeuten:

$$\underline{H}^{(\text{Li}^+)} = -\frac{1}{2} (\Delta_1 + \Delta_3) - \frac{3}{r_1} - \frac{3}{r_3} + \frac{1}{r_{13}} \quad (3.7)$$

$$\underline{H}^{(\text{H}^-)} = -\frac{1}{2} (\Delta_2 + \Delta_4) - \frac{1}{r_{u_2}} - \frac{1}{r_{u_4}} + \frac{1}{r_{24}} \quad (3.8)$$

$$\underline{H}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)} = \frac{3}{R} - \frac{3}{r_2} - \frac{3}{r_4} - \frac{1}{r_{u_1}} - \frac{1}{r_{u_3}} + \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{23}} + \frac{1}{r_{14}} + \frac{1}{r_{34}}. \quad (3.9)$$

Wir teilen nun (3.3) und (3.4) entsprechend den Zerlegungen (3.6) und (2.1) auf:

$$h_{\text{hom, het}} = h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+)} + h_{\text{hom, het}}^{(\text{H}^-)} + h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)} \star \quad (3.10)$$

$$h_{\text{het, hom}} = h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li})} + h_{\text{het, hom}}^{(\text{H})} + h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li}, \text{H})} \quad (3.11)$$

In den „inneratomaren“ Anteilen $h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+)}$, $h_{\text{hom, het}}^{(\text{H}^-)}$, $h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li})}$, $h_{\text{het, hom}}^{(\text{H})}$ von (3.10), (3.11) setzen wir nun zweckmäßigerweise für F_{13} , U_{24} $\varphi_{3;12}$ die *exakten* Atomeigenfunktionen ein, die den Differentialgleichungen (I; 4.4), (I; 4.5), (I; 2.10) genügen. Führt man mittels

$$\sigma = \int F_{13} U_{24} u_4 \varphi_{3;12} d\tau \quad (3.12)$$

das Überlappungsintegral (zwischen Systemen) ein, so ergibt sich unmittelbar für die inneratomaren Anteile:

$$\left. \begin{aligned} h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+)} &= \sigma E^{(\text{Li}^+)}; & h_{\text{hom, het}}^{(\text{H}^-)} &= \sigma E^{(\text{H}^-)}; \\ h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li})} &= \sigma E^{(\text{Li})}; & h_{\text{het, hom}}^{(\text{H})} &= \sigma E^{(\text{H})}. \end{aligned} \right\} \quad (3.13)$$

Würde man nun auch in (3.12) sowie in den *zwischenatomaren* Anteilen $h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)}$ bzw. $h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ von (3.10), (3.11) die *exakten* Atomeigenfunktionen einsetzen, so wäre sicher $h_{\text{hom, het}} = h_{\text{het, hom}}$. Da diese nicht explizit bekannt sind, so setzt man, um bei der W.g.S. schnell zu konkreten Endergebnissen zu gelangen, in (3.12) sowie in $h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)}$, $h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ (3.10), (3.11) für F_{13} , U_{24} , $\varphi_{3;12}$ die *Näherungen* durch Produkte (I; 4.3), (I; 2.2) ein. Da die 1s-Funktion \hat{f}_i des Li^- -Ions sich praktisch nicht von der 1s-Funktion f_i des neutralen Li-Atoms unterscheidet, so dürfen mit der gleichen Begründung, wie auf S. 580 die Integrale, die das „kleine“ Produkt $f_i \cdot g_i$ enthielten, gestrichen wurden, jetzt auch alle Integrale gestrichen werden, die das Produkt $\hat{f}_i \cdot g_i$ enthalten. Führt man ferner die Überlappungsintegrale ein

$$S_{\hat{f}f} = \int \hat{f}_i f_i d\tau_i; \quad S_{\hat{u}u} = \int \hat{u}_i u_i d\tau_i, \quad (3.14)$$

so ergibt sich auf Grund von (3.3), (3.4), (3.10), (3.11), (3.13) der folgende Wert für die Differenz δ (3.5):

$$\delta = S_{\hat{f}f}^2 S_{\hat{u}u} S_{\hat{u}g} [E^{(\text{H}^-)} - E^{(\text{H})}] - (E^{(\text{Li})} - E^{(\text{Li}^+)}) - \left. \begin{aligned} &- S_{\hat{f}f}^2 S_{\hat{u}u} \int \frac{3}{r_i} \hat{u}_i g_i d\tau_i + S_{\hat{f}f}^2 S_{\hat{u}u} \int \frac{\hat{u}_i g_i}{r_{ui}} d\tau_i - \\ &- S_{\hat{f}f}^2 \int \frac{\hat{u}_i u_i \hat{u}_j g_j}{r_{ij}} d\tau_i d\tau_j + 2 S_{\hat{f}f} S_{\hat{u}u} \int \frac{\hat{f}_i^2 \hat{u}_j g_j}{r_{ij}} d\tau_i d\tau_j. \end{aligned} \right\} \quad (3.15)$$

c) *Explizite Berechnung von δ mittels Hartree-Funktionen.* Wir berechnen nun die rechte Seite von (3.15). Zu diesem Zweck machen wir

* Hierin bedeutet beispielsweise $h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+)}$ $= \int u_4 \varphi_{3;12} \underline{H}^{(\text{Li}^+)} F_{13} U_{24} d\tau$. Mit $\underline{H}^{(\text{Li}^+)}$ aus (3.7).

die Annahme, daß die dort auftretenden Eielektronen-Eigenfunktionen u_i und g_i Hartree-Funktionen sind, die also den folgenden beiden Integrodifferentialgleichungen genügen:

$$-\frac{1}{2} \Delta_i g_i - \frac{3}{r_i} g_i + 2 \int \frac{\hat{f}_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \cdot g_i = E^{(g)} g_i \quad (3.16)$$

$$-\frac{1}{2} \Delta_i \hat{u}_i - \frac{1}{r_{u_i}} \hat{u}_i + \int \frac{\hat{u}_j^2}{r_{ij}} d\tau_j \cdot \hat{u}_i = E^{(\hat{u})} \hat{u}_i. \quad (3.17)$$

Multipliziert man (3.16) mit \hat{u}_i und (3.17) mit g_i , subtrahiert und integriert über den unendlichen Raum $d\tau_i$, so ergibt sich nach Anwendung des Greenschen Satzes

$$\left. \begin{aligned} 0 = S_{\hat{u}g}(E^{(\hat{u})} - E^{(g)}) - \int \frac{3}{r_i} \hat{u}_i g_i d\tau_i + \\ + \int \frac{\hat{u}_i g_i}{r_{u_i}} d\tau_i - \int \frac{\hat{u}_i^2 \hat{u}_j g_j}{r_{ij}} d\tau_i d\tau_j + 2 \int \frac{\hat{f}_i^2 \hat{u}_j g_j}{r_{ij}} d\tau_i d\tau_j. \end{aligned} \right\} \quad (3.18)$$

Nach dem Theorem von KOOPMANS¹² ist der in (3.16) bzw. (3.17) auftretende Lagrange-Multiplikator $E^{(g)}$ bzw. $E^{(\hat{u})}$ in guter Näherung die Energiedifferenz des Ions und des neutralen Atoms, also nahezu:

$$E^{(g)} = E^{(\text{Li})} - E^{(\text{Li}^+)}; \quad E^{(\hat{u})} = E^{(\text{H}^-)} - E^{(\text{H})}. \quad (3.19)$$

Das Koopmanssche Theorem würde bekanntlich in aller Strenge gelten, falls exakt

$$\hat{f}_i = f_i \quad \hat{u}_i = u_i \quad (3.20)$$

wäre. Mit der vereinfachenden Annahme, daß (3.20) exakt richtig ist (= Koopmanssche Näherung), sind die beiden Überlappungsintegrale (3.14) = 1:

$$S_{\hat{f}f} = 1; \quad S_{\hat{u}u} = 1. \quad (3.21)$$

Setzt man in (3.15) für $E^{(\text{H}^-)} - E^{(\text{H})}$ bzw. $E^{(\text{Li})} - E^{(\text{Li}^+)}$ die Werte (3.19) und für $S_{\hat{f}f}$, $S_{\hat{u}u}$ die Werte (3.21) ein und beachtet (3.20), so wird die rechte Seite von (3.15) mit der rechten Seite von (3.18) identisch. Da Entsprechendes für die linken Seiten gelten muß, so bedeutet dies: *Bei Verwendung von Hartree-Funktionen in den zwischenatomaren Energieanteilen $h_{\text{hom,het}}^{(\text{Li}^-, \text{H}^-)}$, $h_{\text{het,hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ ist in der Koopmansschen Näherung die Energiedifferenz δ (3.5) gleich Null.*

Wegen (3.3), (3.4) bedeutet dies, daß das erste Glied der rechten Seite von (3.1) praktisch gleich dem ersten Glied der rechten Seite von (3.2) ist. Da die zweiten Glieder der rechten Seiten von (3.1), (3.2) viel kleiner sind als die ersten Glieder, und sich übrigens auch zeigen läßt, daß diese nahezu einander gleich sind, so ist mit den obigen

¹² KOOPMANS, T.: Physica, Haag **1**, 104 (1933).

vereinfachenden Annahmen bei der Methode der W.g.S. praktisch *das Übergangselement zwischen dem homöopolaren und heteropolaren Zustand des LiH-Moleküls hermitisch, wenn in den zwischenatomaren Anteilen Hartree-Funktionen benutzt werden:*

$$H_{\text{hom, het}} = H_{\text{het, hom}}. \quad (3.22)$$

Diese Beweisführung läßt sich ersichtlich auf andere Übergangselemente und auch auf andere Moleküle übertragen.

Entsprechend den Betrachtungen des § 2 läßt sich ferner zeigen, daß die Differenz δ (3.5) wesentlich von Null verschieden ausfallen kann, wenn nicht die Hartreeschen Atomfunktionen (sondern beispielsweise Slater-Funktionen) in den zwischenatomaren Übergangselementen $h_{\text{hom, het}}^{(\text{Li}^+, \text{H}^-)}$, $h_{\text{het, hom}}^{(\text{Li}, \text{H})}$ verwendet werden. Dieser Umstand weist auf die Notwendigkeit hin, *beim letzten Schritt der W.g.S. unbedingt die Hartreeschen Funktionen als approximierende Einelektronen-Eigenfunktionen in den zwischenatomaren Energieanteilen zu benutzen.*

Die Tatsache, daß die Übergangselemente bei der praktischen Durchführung der W.g.S. nur in *sehr guter Näherung* hermitisch sind, bedeutet zweifellos einen kleinen Mangel dieser Methode. Dieser Mangel ließe sich zwar beseitigen, wenn während der gesamten Rechnung die Atomeigenfunktionen durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen approximiert werden. Dann muß man aber die im § 2 dieser Arbeit sowie die im § 3 von¹ geschilderten Nachteile in Kauf nehmen. Die hierdurch bedingte Ungenauigkeit bei der Berechnung der Molekülenergie hält der Verfasser für größer als den Fehler, der bei der Methode der W.g.S. infolge ungenauer Kenntnis exakter Atomeigenfunktionen in den zwischenatomaren Energieanteilen auftritt.

d) *Zusammenhang mit den Übergangselementen beim Verfahren der ICC.* Der Unterschied zwischen der ICC und W.g.S. besteht darin, daß a) bei der ICC die Atomeigenfunktionen *durchgängig* durch das Produkt von Einelektronen-Eigenfunktionen approximiert werden, und b) der dadurch auftretende Fehler durch ein Zusatzglied im Hamilton Operator kompensiert wird, das für die verschiedenen Matrixelemente verschieden lautet. In der Bezeichnungsweise von HURLEY* lautet der Hamilton-Operator bei der ICC:

$$\underline{H}^{(\text{ICC})} = \underline{H} + \frac{1}{2} [\tilde{M} (W - \tilde{W}) + (W - \tilde{W}) \tilde{M}]. \quad (3.23)$$

Hierbei ist \underline{H} der Hamilton-Operator des gesamten Moleküls, ist also im speziellen Fall des LiH mit unserem Ausdruck (2.1) identisch. Auf Grund der weiteren Angaben von HURLEY überzeugt man sich leicht, daß beispielsweise bei der Berechnung des Übergangselements (3.4)

* Vgl. Anm. 4 der S. 574, Formelnummer (2.4).

nach der Methode der ICC der Ausdruck (3.23) lautet

$$\underline{H}^{(ICC)} = \underline{H} + \frac{1}{2} \sigma [E^{(Li)} - \tilde{E}^{(Li)} + E^{(Li^+)} - \tilde{E}^{(Li^+)} + E^{(H^-)} - \tilde{E}^{(H^-)}] \quad (3.24)$$

mit $\sigma \approx S_{ug}$ aus (3.12). Die in (3.24) neu aufgetretenen Größen $\tilde{E}^{(Li)}$, $\tilde{E}^{(Li^+)}$, $\tilde{E}^{(H^-)}$ bedeuten die Energie des betreffenden Atoms (Ions) in der durch die verwendeten Einelektronen-Eigenfunktionen bedingten Näherung.

Um nun unser Übergangselement (3.4) $h_{het, hom}^{(ICC)}$ beim Verfahren der ICC zu berechnen, hat man a) die dort auftretenden Atomeigenfunktionen F_{13} , U_{24} , $\varphi_{3;12}$ durch ihre Produktansätze (I; 4.3), (I; 2.2) zu approximieren, und b) das dortige \underline{H} durch den Wert $\underline{H}^{(ICC)}$ (3.24) zu ersetzen. Wir machen genau wie im Unterabschnitt c) die zusätzliche Annahme, daß die $2s$ -Li-Funktion g_i der Hartree-Gleichung (2.18) genügt. Mit den gleichen Vereinfachungen wie in c) kommt dann nach elementarer Zwischenrechnung

$$h_{het, hom}^{(ICC)} = h_{het, hom}^{(Li, H)} + \sigma E^{(H)} + \sigma E^{(Li)} + \left. + \frac{1}{2} \sigma [\tilde{E}^{(Li)} - \tilde{E}^{(Li^+)} - (E^{(Li)} - E^{(Li^+)}) + (E^{(H^-)} - \tilde{E}^{(H^-)})] \right\} \quad (3.25)$$

Nach (3.10), (3.12) stimmt dieser Ausdruck mit dem nach der Methode der W.g.S. erhaltenen Wert überein bis auf den letzten Term mit der eckigen Klammer. Da in der Koopmansschen Näherung $\tilde{E}^{(Li)} - \tilde{E}^{(Li^+)} \approx E^{(Li)} - E^{(Li^+)}$ ist, so reduziert sich dieses Zusatzglied in guter Näherung auf $\frac{1}{2} \sigma [E^{(H^-)} - \tilde{E}^{(H^-)}]$. Mit den numerischen Annahmen daß $E^{(H^-)} - \tilde{E}^{(H^-)} \approx E^{(H^-)}/100 \approx -0,2$ eV ist, und daß ferner $\sigma \approx S_{ug} \approx 0,5$, kommt für den Zusatzterm ein numerischer Wert von etwa $-0,05$ eV, der zweifellos vernachlässigbar klein ist.

Auch an diesem Beispiel ließe sich zeigen, daß bei Verwendung einer anderen Eigenfunktion für g_i als der Hartree-Funktion (2.18) die Übergangselemente bei den Methoden der ICC und W.g.S. nicht mehr übereinstimmen.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Hamburg

Eine Rangordnung der einzelnen Terme in den schwachen Wechselwirkungen

Von

W. R. THEIS

(Eingegangen am 20. Dezember 1957)

In der Theorie des β -Zerfalls beschränkte FERMI¹ die Wechselwirkung auf quadrilineare Ausdrücke in den beteiligten Feldern und verlangte, daß keine Ableitungen nach den Koordinaten vorkommen sollten. Diese Forderung zusammen mit der Invarianz gegenüber der vollen Lorentz-Gruppe, der Nukleonen- und Leptonenerhaltung liefert die bekannten Terme $S V T A P$. Fordert man nur Invarianz gegenüber der eigentlichen orthochronen Lorentz-Gruppe, Nukleonenerhaltung und das Nichtauftreten von Ableitungen, so erhält man den viel allgemeineren Paulischen Ansatz mit 20 komplexen Kopplungskonstanten². Die 20 Terme sind in der üblichen 4-Komponentenformulierung völlig gleichberechtigt.

Es wurden verschiedene Beschränkungen in der Zahl der Kopplungsterme vorgeschlagen, darunter besonders die Lee-Yangsche³ und solche, die durch „Teilinvarianz“-Forderungen gekennzeichnet sind. Bei den letzteren wird Invarianz der Wechselwirkung gegenüber Transformationen gefordert, die das Massenglied in der freien Dirac-Gleichung verändern. Wird für das Neutrino verschwindende Masse angenommen, so geht die „Teilinvarianz“ bezüglich des Neutrinos in eine strenge über und führt auf einen Ansatz vom Lee-Yangschen Typ. „Teilinvarianzen“, wie sie bei nicht verschwindender Masse gefordert werden, traten bisher noch nicht auf.

Nun kann man aber jedes Teilchen vom Spin $1/2$ durch nur zwei Komponenten beschreiben, die den beiden Spineinstellungen entsprechen. Als freie Gleichung tritt dann lediglich die Klein-Gordon-Gleichung auf, die keinen in m linearen Term enthält. Die erwähnte „Teilinvarianz“ ist durch die Dirac-Gleichung, also durch die 4-Komponentenbeschreibung bedingt. Das deutet darauf hin, daß vielleicht eine 2-Komponentenformulierung ohne Dirac-Gleichung für die schwachen

¹ FERMI, E.: Z. Physik **88**, 161 (1934).

² PAULI, W.: Nuovo Cim. **6**, 204 (1957).

³ LEE, T. D., u. C. N. YANG: Phys. Rev. **102**, 290 (1956).

Wechselwirkungen ohne Paritätserhaltung die adäquatere Beschreibung ist.

Sei $u_r(x)$ ein zweikomponentiges Spinorfeld, dann lautet die freie Feldgleichung

$$\partial_\mu \partial^\mu u_r(x) - m^2 u_r(x) = 0$$

(Bezeichnungen nach v. D. WAERDEN⁴). Der konjugiert komplexe Spinor transformiert sich wie ein Spinor mit gepunkteten Indizes. Invarianten gegenüber der eigentlichen orthochronen Lorentz-Gruppe sind $u_r v^r = -u^r v_r$ und $u_r^* v^{*r} = -u^{*r} v_r^*$. Jedem Vektor a_μ ist ein zweistufiger Spinor a^{rs} zugeordnet vermöge $a^{rs} = a_\mu \sigma^{\mu,rs}$. p, n, e, ν seien die Felder der Protonen, Neutronen, Elektronen und Neutrinos, die sich alle in der gleichen (ungepunkteten) Weise transformieren sollen. Bei Nukleonen- und Ladungserhaltung müssen die quadrilinearen Wechselwirkungsterme von der Form

$$p^* n e^* \nu + \text{h. c.} \quad \text{bzw.} \quad p^* n e^* \nu^* + \text{h. c.}$$

sein. Zur Bildung von Invarianten steht außer diesen Feldern noch der Vektor $\frac{\partial}{\partial x_\mu}$ zur Verfügung. Als Rangordnung der verschiedenen Terme soll die Zahl der vorkommenden Ableitungen gewählt werden*.

In nullter Ordnung kann man nur einen einzigen Term bilden, nämlich

$$p_k^* n_l e^{*k} \nu^l = -\frac{1}{2} p_k^* \sigma^{\mu,kl} n_l e^{*\dot{m}} \sigma_{\mu,\dot{m}n} \nu^n.$$

Auch in nichtrelativistischer Näherung für die Nukleonen bleiben hier alle vier Komponenten σ^μ von gleicher Größenordnung im Gegensatz zur üblichen Formulierung; die drei räumlichen Komponenten liefern Gamow-Teller- und die zeitlichen Fermi-Auswahlregeln, so daß in nullter Ordnung bereits beide Typen enthalten sind (V und A zu gleichen Teilen).

In erster Ordnung gibt es nur Terme, die die Leptonenzahl verändern. Allgemein erhalten die geraden Ordnungen die Leptonenzahl, die ungeraden nicht.

Den Zusammenhang mit der üblichen Formulierung sieht man am besten in der v. d. Waerdenschen Darstellung der γ -Matrizen. Dort gilt

$$\psi = \left\{ u_r, \frac{\hbar}{m i} \partial^{sr} u_r \right\}.$$

* Die elektromagnetische Wechselwirkung ist unter den paritätserhaltenden von niedrigster Ordnung.

⁴ VAN DER WAERDEN, B. L.: Die gruppentheoretische Methode in der Quantenmechanik. §20. Berlin: Springer 1932.

Der Viererspinor enthält also bereits Ableitungen, wodurch die Fermische Forderung der Ableitungsfreiheit weniger zwingend erscheint. Der Term nullter Ordnung erhält man, wenn man *alle* Viererspinoren mit $\frac{1}{2}(1 + \gamma_5)$ projiziert*. Die Yang-Leesche Theorie schließt durch die Projektion des Neutrinofeldes einige Terme höherer Ordnung aus, jedoch nicht alle Terme bestimmter Ordnung.

Es scheint so, als ob man bei der Auswahl der Terme in der Wechselwirkung mit altbewährten Gesichtspunkten auskommt und auf bisher nicht benötigte Begriffe wie „Teilinvarianz“ und Massenumkehr noch verzichten kann.

* Als der Verfasser Herrn Dr. ENZ (Zürich) dies Ordnungsschema brieflich mitteilte, wurde er freundlicherweise darauf aufmerksam gemacht, daß R. P. FEYNMAN und M. GELL-MANN in einer noch nicht veröffentlichten Arbeit die Projektion aller Viererspinoren gefordert haben. Ein Blaudruck dieser Arbeit war dem Autor leider noch nicht zugänglich. *Anmerkung bei der Korrektur:* Erschienen in Phys. Rev. **109**, 493 (1958).

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Energiereiche γ -Übergänge geringer Intensität beim Zerfall ${}_{83}^{131}\text{Bi}^{214}(\text{RaC}) \xrightarrow{\beta} {}_{84}^{130}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')^*$

Von

ULRICH HAUSER

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 21. Dezember 1957)

Mit einem Deuterium gefüllten Proportionalzählrohr als γ -Spektrometer wurde nach energiereichen γ -Zerfällen des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ gesucht. Fünf intensitätsarme γ -Linien wurden nachgewiesen. Drei dieser Linien entsprechen direkten γ -Zerfällen zum Grundzustand von Niveaus, die aus dem α -Zerfall von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ gefordert werden.

1. Einleitung

$\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$ zerfällt durch β -Emission in $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ mit einer Zerfallsenergie von 3,26 MeV¹. Etwa 80% der β -Übergänge enden auf angeregten Zuständen des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Durch zahlreiche Untersuchungen sind bisher mindestens 11 angeregte Zustände bis 2,44 MeV Anregungsenergie bekannt. Sechs dieser Zustände zerfallen auch wie der Grundzustand von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ durch α -Emission zum Grundzustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$. Für den Energiebereich oberhalb 2,44 MeV ist wenig bekannt. Man weiß nur, daß etwa 10% der β -Zerfälle des $\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$ in diesen Energiebereich übergehen, und daß sich hier mindestens 4 α -emittierende Zustände befinden müssen. Letzteres folgt aus den 12 bzw. 13 Rutherfordschen α -Gruppen langer Reichweite, die von den angeregten Zuständen des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ ausgehen müssen².

Im folgenden wird über Messungen berichtet, durch die einige energiereiche γ -Übergänge von angeregten Zuständen in diesem Energiebereich nachgewiesen werden.

* Vorgetragen auf der Physikertagung in Heidelberg, 28. 9. 1957. HAUSER, U.: Phys. Verh. **8**, 174 (1957).

¹ Eine ausführliche Literaturzusammenstellung über die bisherigen Untersuchungen befindet sich bei NIERHAUS, R., u. H. DANIEL: Z. Naturforsch. **12a**, 1 (1957).

² RUTHERFORD, E., W.B. LEWIS u. B.V. BOWDEN: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **142**, 347 (1933). — RUTHERFORD, E., F.A.B. WARD u. W.B. LEWIS: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **131**, 684 (1931). — BRIGGS, G.H.: Rev. Mod. Phys. **26**, 1 (1954).

2. Meßmethode

Zum Nachweis der energiereichen γ -Übergänge diente der Prozeß $D(\gamma, n)p$, wobei die durch eine γ -Strahlung ausgelösten Photoprotonen in einem mit Deuterium gefüllten Proportionalzählrohr gemessen wurden. Mit dieser Methode haben bereits verschiedene Autoren energiereiche γ -Übergänge geringer Intensität gefunden³. Diese Methode hat einige Vorteile: Die Summationslinie eines Kaskadenüberganges kann

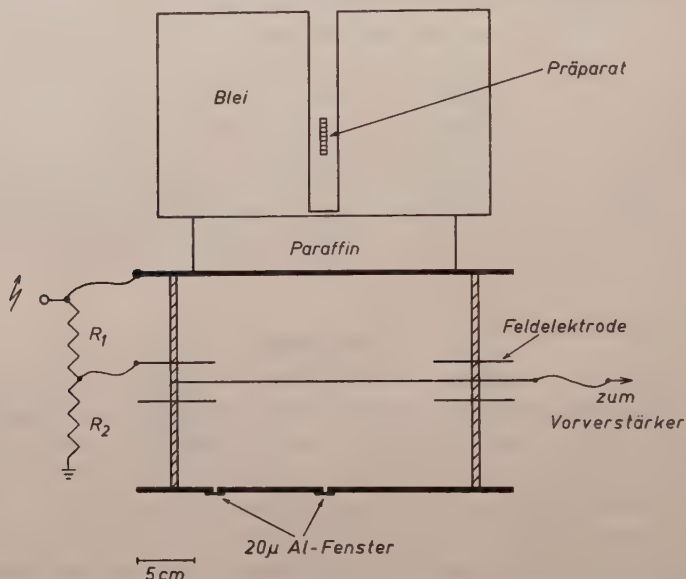


Fig. 1. Meßanordnung zur Untersuchung energiereicher γ -Übergänge. Die weiche γ -Strahlung wurde mit 2 mm Blei weggefiltert. (Für die Justierung der Feldelektroden wurde charakteristische Röntgenstrahlung durch die Al-Fenster in das hierfür mit Argon-Methan gefüllte Proportionalzählrohr eingeschossen.) Proportionalzählrohr: Mantel $r_a = 95$ mm; Feldelektrode $r_f = 18$ mm; Zählrohr $r_z = 1/10$ mm; effektive Länge $l = 190$ mm; Gasdruck 72 cm Hg Deuterium + 2% CO_2 .

keinen direkten γ -Übergang vortäuschen; es ist eine sehr gute Bestimmung der γ -Energie möglich; alle nicht interessierenden energiearmen γ -Übergänge werden unterdrückt. Nachteilig sind: Der relativ kleine Wirkungsquerschnitt für die Photospaltung, d.h. die geringe Ansprechwahrscheinlichkeit; die starke Neutronenempfindlichkeit über „Knock-on“-Deuteronen; das „Pile-up“ von Sekundärelektronenimpulsen bei einem intensiven γ -Untergrund.

Bereits 1950 haben BISHOP, WILSON und HALBAN⁴ mit einer Deuterium gefüllten Ionisationskammer beim $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ nach einem 3 MeV- γ -

³ BISHOP, G., u. R. WILSON: In K. SIEGBAHN, β - and γ -Spectroscopy. Amsterdam: North-Holland Publishing Co. 1955.

⁴ BISHOP, G., R. WILSON u. H. HALBAN: Phys. Rev. **77**, 416 (1950).

Übergang von einem Niveau, das die 13. energiereichste aber intensitätsärmste Rutherfordsche α -Gruppe emittiert, gesucht.

Fig. 1 zeigt die experimentelle Anordnung. Das Proportionalzählrohr war gefüllt mit 98% Deuterium (durch Diffusion durch ein Palladiumrohr gereinigt) und 2% CO_2 bei einem Gesamtdruck von 1 Atm. Die Linedimensionen des Zählrohres wurden so gewählt, daß die Reichweite der zu erwartenden Photoprotonen (< 2 cm) klein gegen den Zählrohrdurchmesser war, und daß der maximale Energieverlust der Sekundärelektronen < 50 keV war. Aus dem letzten Grund war die Länge des Zählrohres gleich dem Durchmesser. Wegen der geringen Länge des Zählrohres mußten die Randinhomogenitäten des elektrischen Feldes durch Feldelektroden beseitigt werden.

Eine kurze impulsformende Zeitkonstante ($1,5 \mu\text{sec}$) des Proportionalverstärkers verhinderte eine starke Aufsummation der Sekundärelektronenimpulse („Pile-up“) und reduzierte die Amplituden der energiereichen Elektronenimpulse, weil deren Sammelzeit im Zählrohr groß gegen diese Zeitkonstante war.

Ein 10-Kanal-Impulshöhen-Analysator registrierte das differentielle Impulsgrößenspektrum der Photoprotonen. Ein Impulstor, das pro Impuls für $2 \mu\text{sec}$ den Analysator öffnete, unterdrückte weiterhin die großen Amplituden der langsam ansteigenden Summationsimpulse der Sekundärelektronen.

Die strenge Linearität von Deuterium-Proportionalzählrohren ist bekannt³ und wurde auch bei den unten beschriebenen Messungen bestätigt, bei denen die Gasmultiplikation im Zählrohr etwa 100 bis 150fach war. Der Nulleffekt betrug im Bereich 50 bis 500 keV Photoprotonenenergie etwa 5 bis 10 Impulse pro Stunde und 50 keV-Energieintervall.

3. Durchführung der Messungen und Meßergebnisse

Zur Verhinderung eines Neutronenuntergrundes durch (α, n) -Prozesse befanden sich die Radium-Emanationspräparate* (Anfangsstärke 100 bis 300 mC) in einem Platin- oder Vacon-Röhrchen mit sehr kurzer Glasabschmelzung. Eine Paraffinschicht von 5 cm sollte Neutronen, die noch im restlichen Glas oder an Gasen im Präparat erzeugt werden könnten, abbremsen. Handelsübliche Radium-Präparate waren wegen der Neutronenproduktion ungeeignet.

Eine Meßreihe dauerte etwa 2 Wochen. Die Linearität der Apparatur kontrollierte ein Quecksilber-Relais-Impulsgeber. Bei den ausgewerteten Meßreihen war die Schwankung des Linienschwerpunktes der $2,615 \text{ MeV-ThC''}$ -Eichlinie kleiner als 1%.

* Herrn Dr. U. SCHMIDT-ROHR, Institut für Physik im Max-Planck-Institut für medizinische Forschung, Heidelberg, danke ich für die Herstellung der Präparate.

Das gemessene Impulsspektrum der Photoprotonen ist in Fig. 2 wiedergegeben. Kurve *I* zeigt die 2,615 MeV-ThC''-Eichlinie, Kurve *II* das Impulsspektrum des Radium-Emanationspräparates zusammen mit der 2,438 MeV-Referenzlinie des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Absorptionsmessungen mit Blei und Paraffin (bis zu 25 cm) ergaben, daß kein störender Neutronenuntergrund vorhanden war.

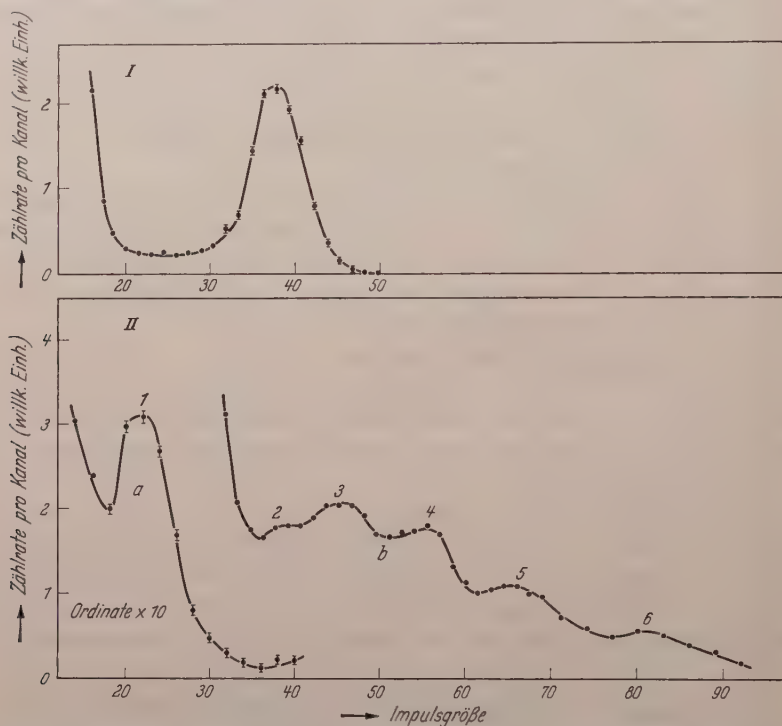


Fig. 2. *I* Impulsgrößenverteilung der Photoprotonen der 2,615 MeV-ThC''-Linie. Halbwertsbreite 22,5%; extrapolierte Basisbreite 31%, theoretische Basisbreite 27%. *II* Impulsgrößenverteilung der Photoprotonen der $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ - γ -Linien. Teil a zeigt die 2,438 MeV-Referenzlinie, der Ordinatenmaßstab muß mit dem Faktor 10 multipliziert werden. Teil b zeigt die intensitätsärmeren γ -Linien. Der statistische Fehler aller Meßpunkte ist hier immer kleiner als 3,5% der differentiellen Zählrate/Kanal. Die Abszisse entspricht dem γ -Energiebereich von 2,4 bis 3,2 MeV

Tabelle 1 zeigt das Ergebnis der Messungen. Das Spektrum wurde mit Hilfe der theoretischen Linienform für die Photoprotonen analysiert, indem für jedes einzelne Maximum die zu erwartende Linienform konstruiert wurde, unter Berücksichtigung der Abweichung der ThC''-Linie von der theoretischen Linienform. Die Energieungenauigkeit ist im wesentlichen durch die Schwerpunktsverschiebung einer Linie durch die Nachbarlinie gegeben.

Die Intensitätsangaben haben einen geschätzten Fehler von $\pm 30\%$. Diese Fehlerangabe folgt aus der Analyse des Impulsspektrums und ist

Tabelle 1. Meßergebnisse aus der Impulsgrößenverteilung der Photoprotonen

Nr.	E_γ MeV	E_p keV	n_γ %
1	$2,438 \pm 0,006$	106 ± 2	2,2
2	(2,6)	~ 190	$\leq 0,04$
3	$2,700 \pm 0,009$	237 ± 5	0,1
4	$2,775 \pm 0,010$	275 ± 6	0,05
5	$2,886 \pm 0,015$	330 ± 8	0,03
6	$3,046 \pm 0,025$	410 ± 15	0,03 (komplex ?)
	2,615	195	ThC''-Eichlinie

E_γ , Energie der γ -Linie; E_p , Energie der Photoprotonen im Linienschwerpunkt; n_γ , absolute Intensität in % pro Zerfall $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$; Bindungsenergie des Deuterons $2,226 \pm 0,002$ MeV; Wirkungsquerschnitt für die Photospaltung des Deuterons s. SQUIRES⁵

gegeben durch den noch vorhandenen „Pile-up“-Untergrund. Dieser Untergrund konnte auch noch integral durch oszillographisches Beobachten bestimmt werden, da die „Pile-up“-Impulse sich von den Photoprotonen-Impulsen durch die Form der Anstiegsflanke deutlich unterscheiden ließen. Die absolute Intensität von 2,2% pro Zerfall der 2,438 MeV-Referenzlinie ist ein Mittelwert aus neueren Messungen¹.

4. Diskussion und Vergleich mit anderen Messungen

Aus den Rutherfordschen² α -Gruppen werden bei $2,513 \pm 0,010$ MeV, $2,697 \pm 0,004$ MeV, $2,880 \pm 0,010$ MeV und $\sim 3,0$ MeV α -emittierende Niveaus gefordert. Diesen Niveaus lassen sich die γ -Linien Nr. 3 (2,700 MeV), Nr. 5 (2,886 MeV) und Nr. 6 (3,046 MeV) zuordnen. Die Basisbreite der 3,046 MeV- γ -Linie ist um etwa 50% größer, als man erwarten sollte; es ist möglich, daß diese Linie komplex ist. Für das 2,513 MeV- α -emittierende Niveau wurde kein direkter γ -Übergang zum Grundzustand gefunden.

Die Linie Nr. 4 (2,775 MeV) muß ein direkter γ -Zerfall eines nicht- α -emittierenden Niveaus zum Grundzustand sein, da die Energie größer ist als die Differenz zwischen der Zerfallsenergie (3,26 MeV) und der Energie des ersten angeregten Zustandes (0,609 MeV). Bei einer Protonenenergie von ~ 190 keV (Nr. 2) ergaben die Messungen eine reproduzierbare Stufe. In diesem Energiebereich war das „Pile-up“ noch sehr stark störend, so daß die Photoprotonen einer schwachen γ -Linie von 2,6 MeV stark verdeckt wurden. Von dieser Linie hat bereits ELLIS⁶ bei 2,606 MeV die K-Konversionslinie gefunden, und auch WOLFSON⁷ hat hier eine schwache γ -Linie gemessen. Diese Linie könnte

⁵ SQUIRES, G.L.: Progr. Nucl. Phys. **2**, 89 (1955).

⁶ ELLIS, C.D.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **143**, 350 (1934).

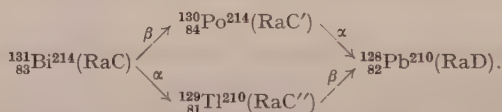
⁷ WOLFSON, J.L.: Phys. Rev. **78**, 176 (1950).

noch einem Kaskadenübergang von einem Niveau von 3,215 MeV zum ersten angeregten 0,609-MeV-Zustand zugeordnet werden.

Energetisch ließen sich die 2,606 MeV- und die 2,775 MeV-Linien noch in den Zerfallszweig ${}_{81}^{210}\text{Ti}(\text{RaC}'') \xrightarrow{\beta} {}_{82}^{210}\text{Pb}(\text{RaD})$ einordnen, der in 0,04% aller Zerfälle von ${}_{83}^{214}\text{Bi}(\text{RaC})$ durch den Zerfall ${}_{83}^{214}\text{Bi}(\text{RaC}) \xrightarrow{\alpha} {}_{81}^{210}\text{Ti}(\text{RaC}'')$ entsteht. Das Termschema von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ wurde kürzlich von MAYER-KUCKUK⁸ an angereichertem $\text{Ti}^{210}(\text{RaC}'')$ untersucht. γ -Linien dieser Energie wurden dabei nicht beobachtet, obwohl sie mit etwa 100% pro Zerfall $\text{Ti}^{210}(\text{RaC}'')$ hätten auftreten müssen, falls sie aus diesem Zerfallszweig stammen würden.

Unabhängig von diesen Messungen wurde auch von anderen Autoren nach energiereichen γ -Übergängen des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ gesucht⁹. Insbesondere wurden unsere Meßergebnisse durch Untersuchungen mit einem Drei-Kristall-Paar-Spektrometer von KLAUS MAYER¹⁰ gut bestätigt, dabei wurden noch weitere schwache γ -Übergänge aus dem Zerfall des $\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$ gefunden.

Eine folgende Arbeit „Über den γ - und α -Zerfall der angeregten Zustände von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ “ befaßt sich ausführlich mit dem Zerfallschema:



Wir verweisen deshalb für eine eingehendere Diskussion der hier nur kurz angeschnittenen Probleme auf diese Arbeit.

Ich danke Herrn Professor O. HAXEL für die Anregung und stete Förderung der vorliegenden Untersuchung. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für apparative Hilfsmittel.

⁸ MAYER-KUCKUK, TH.: Z. Naturforsch. **11a**, 627 (1956).

⁹ DANIEL, H.: Z. Naturforsch. **12a**, 194 (1957).

¹⁰ MAYER, K.: Institut für Physik im Max-Planck-Institut für medizinische Forschung, Heidelberg; private Mitteilung, erscheint in Kürze.

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Über den γ - und α -Zerfall der angeregten Zustände von $^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')^*$

Von

ULRICH HAUSER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 11. Januar 1958)

Mit Hilfe der Theorie des α -Zerfalls und der Theorie der Multipolübergänge wird für mehrere angeregte Zustände des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ die absolute bzw. normierte Übergangswahrscheinlichkeit für γ -Emission berechnet und daraus Spin und Parität bestimmt. Hieraus wird für $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ ein Termschema vorgeschlagen, und es ergibt sich eine vollständige Einordnung der 13 von RUTHERFORD gefundenen α -Gruppen in das Zerfallsschema $\text{Po}^{214}(\text{RaC}') \xrightarrow{\alpha} \text{Pb}^{210}(\text{RaD})$. Die berechneten normierten γ -Übergangswahrscheinlichkeiten stimmen überraschend gut untereinander und mit den zu erwartenden überein. Die α -emittierenden Niveaus lassen sich in äquidistante Gruppen einteilen, welche sehr genau einem Gesetz der Form $E = E_0 + nD$ gehorchen. Dieses läßt sich nicht ohne weiteres als Konsequenz einer Kollektivbewegung des Kernes interpretieren.

1. Einleitung

Es ist bisher verhältnismäßig wenig über die angeregten Zustände der Nachbarkerne des doppeltmagischen Kernes $^{126}_{82}\text{Pb}^{208}$ bekannt. $^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ zeichnet sich gegenüber den Nachbarkernen dadurch aus, daß eine besonders große Zahl von angeregten Zuständen experimentell zugänglich ist, und daß auch aus angeregten Zuständen α -Emission stattfindet¹. Trotz zahlreicher Untersuchungen ließen sich bisher noch nicht für $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ eindeutige Zuordnungen für die γ -Übergänge, die α -Zerfälle und die β -Übergänge vom $^{131}_{83}\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$ finden. Für fast alle Zustände sind Spin und Parität unbekannt.

Fig. 1 zeigt das Zerfallsschema des $\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$. Dieses zerfällt zu 0,04% durch α -Emission in $^{129}_{81}\text{Tl}^{210}(\text{RaC}'')$, das durch β -Zerfall auf angeregte Zustände des $^{128}_{82}\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ übergeht. Das in Fig. 1 angegebene Zerfallsschema $\text{Tl}^{210}(\text{RaC}'') \xrightarrow{\beta} \text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ konnte kürzlich durch Unter-

* Vorgetragen auf der Physiker-Tagung, Heidelberg, 28. Sept. 1957. HAUSER, U.: Phys. Verh. **8**, 174 (1957).

¹ RUTHERFORD, E., W. B. LEWIS u. B. V. BOWDEN: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **142**, 347 (1933). — RUTHERFORD, E., F. A. B. WARD u. W. B. LEWIS: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **131**, 684 (1931). — BRIGGS, G. H.: Rev. Mod. Phys. **26**, 1 (1954).

($f \cdot t$)-Werte angeben kann. Die Zerfallsenergie beträgt $3,26 \text{ MeV}^3$. Aus den bisherigen Messungen folgt, daß der Spin des Grundzustandes von $\text{Bi}^{214}(\text{RaC})$ $(0-)$, $(1-)^3$ oder $(2-)^4$ oder $(3-)^5$ sein soll.

Aus der γ -Spektroskopie kennt man eine größere Zahl von γ -Übergängen⁶ und Konversionslinien⁷. Für einige Zustände konnten γ - γ -Koinzidenzen mit der $0,609 \text{ MeV}$ -Linie des ersten angeregten Zustandes und β - γ -Koinzidenzen mit einigen intensiven γ -Linien nachgewiesen werden^{8,3}. Die bisher ermittelten angeregten Zustände zeichnen sich dadurch aus, daß sie meistens auch durch direkten γ -Übergang zum Grundzustand zerfallen.

Der Grundzustand von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ zerfällt durch α -Emission zum Grundzustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ mit einer Zerfallsenergie von $7,8 \text{ MeV}$. Außer dieser α -Gruppe fanden RUTHERFORD et al.¹ noch 12 weitere α -Gruppen mit Zerfallsenergien von $8,4$ bis $10,7 \text{ MeV}$, deren jeweilige Intensität etwa 10^{-5} bis 10^{-6} pro Zerfall ist; Energien und Intensitäten hat RUTHERFORD mit großer Genauigkeit gemessen. Eine 13. α -Gruppe erscheint mit nur etwa 10^{-7} pro Zerfall und hat eine Zerfallsenergie von $\sim 10,9 \text{ MeV}$. Aus diesen α -Gruppen ergeben sich 13 α -emittierende Niveaus unter der Voraussetzung, daß alle α -Zerfälle zum Grundzustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ führen.

In einer vorhergehenden Arbeit⁹ konnten experimentell von drei α -emittierenden Niveaus oberhalb $2,44 \text{ MeV}$ direkte γ -Übergänge zum Grundzustand nachgewiesen werden. Insgesamt sind acht α -emittierende Zustände bekannt, die durch direkten γ -Zerfall zum Grundzustand übergehen. Für den $1,416 \text{ MeV}$ -($0+$)-Zustand^{6,10}, dessen Übergang zum Grundzustand vollständig konvertiert ist, und der außerdem durch γ -Strahlung zum ersten angeregten Zustand zerfällt, wurde kürzlich die Lebensdauer experimentell bestimmt¹¹. Auch für das

³ Ausführliche Literaturhinweise über die bisherigen experimentellen Untersuchungen befinden sich bei NIERHAUS, R. u. H. DANIEL: Z. Naturforsch. **12a**, 1 (1957).

⁴ WAPSTRA, A. H.: Physica, Haag **18**, 1247 (1952).

⁵ FEATHER, N. in: SIEGBAHN, K., β - and γ -Spectroscopy. Amsterdam: North-Holland Publishing Co. 1955.

⁶ DZELEPOV, B. S., u. S. A. SESTOPALOVA: Nuovo Cim. **3** (Suppl.), 54 (1956).

⁷ MLADJENOVIC, M., u. H. SLÄTIS: Ark. Fys. **8**, 65 (1954). — ELLIS, C. D.: Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A **143**, 350 (1934). — CORK, J. M., C. E. BRANYAN, A. E. STODDARD, H. B. KELLER, J. M. LEBLANC u. W. J. CHILDS: Phys. Rev. **83**, 681 (1951).

⁸ JOHANSSON, J.: Ark. Fys. **9**, 561 (1955). — ROWLAND, R. E.: Phys. Rev. **99**, 757 (1955). — DEMICHELIS, F., u. L. A. RADICATI: Nuovo Cim. **3**, 152 (1956). — DEMICHELIS, F., u. R. MALVANO: Nuovo Cim. **10**, 1359 (1953).

⁹ HAUSER, U.: Z. Physik **150**, 593 (1958).

¹⁰ ALBURGER, D., u. A. HEDGRAN: Ark. Fys. **7**, 423 (1954).

¹¹ TUTTER, M.: Vortrag auf der Physikertagung, Bad Nauheim, April 1957. (Wird in Kürze ausführlich publiziert.)

2,510 MeV- α -emittierende Niveau wurde kein direkter Übergang zum Grundzustand gefunden⁹, jedoch läßt sich hier auf Grund von γ - γ -Koinzidenzmessungen⁸ ein γ -Übergang von 1,900 MeV⁶ zum ersten angeregten Niveau zuordnen. Drei von den 13 geforderten α -emittierenden Zustände lassen sich nicht durch geeignete γ -Übergänge bzw. Konversionslinien in das Zerfallsschema einordnen (s. Fig. 1).

2. Analyse des Termschemas

Es ist schwierig, aus den bisherigen Experimenten mit Hilfe der β -Übergänge oder der Konversionslinien unmittelbar auf das genaue

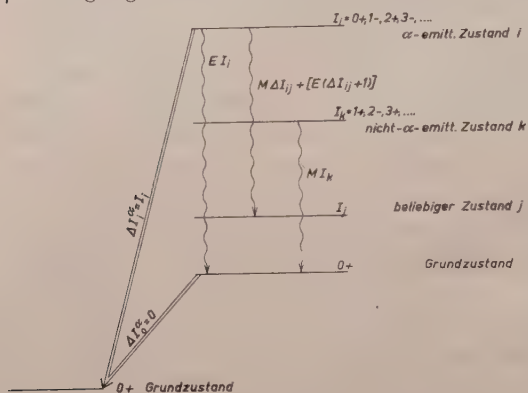


Fig. 2. Der γ - und α -Zerfall von (g, g)-Kernen

Termschema, d. h. auf Spin und Parität der Zustände, von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ zu schließen.

Im folgenden wird aus dem Intensitätsverhältnis von γ - zu α -Zerfall der α -emittierenden Niveaus mit Hilfe der theoretisch bekannten α -Zerfallswahrscheinlichkeit die absolute bzw. normierte γ -Übergangswahrscheinlichkeit be-

stimmt, woraus sich Spin und Parität der α -emittierenden und gegebenenfalls auch der nicht- α -emittierenden Zustände gewinnen lassen.

Es wäre möglich, daß bei den unten beschriebenen Rechnungen die ermittelten normierten γ -Zerfallswahrscheinlichkeiten nur eine grobe Näherung sind, weil die Wahrscheinlichkeit für die Formation eines α -Teilchens und die Nukleonenkonfiguration die α -Zerfallswahrscheinlichkeit stark beeinflussen können. Die von uns erhaltenen Ergebnisse allerdings sind überraschend und weisen nicht auf eine starke Beeinflussung hin.

Auswahlregeln. Da $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ und $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ (g, g)-Kerne sind, werden die Verhältnisse, die beim γ - und α -Zerfall von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ vorliegen, durch die bekannten Auswahlregeln für γ - und α -Übergänge stark vereinfacht. Dieses ist in Fig. 2 dargestellt.

Für ein α -emittierendes Niveau i gilt:

Beim Spin I_i muß die Parität $\pi_i = (-1)^{I_i}$ sein. Für die Drehimpulsänderung ΔI_i^α gilt $\Delta I_i^\alpha = I_i$. Direkte γ -Zerfälle zum Grundzustand sind reine elektrische $E\Delta I_{i0}$ -Übergänge mit der Drehimpulsänderung $\Delta I_{i0} = I_i$.

Für nicht- α -emittierende Niveaus k gilt entsprechend: Beim Spin I_k muß die Parität $\pi_k = (-1)^{I_k+1}$ sein. Direkte γ -Zerfälle zum Grundzustand sind reine magnetische $M1I_{k0}$ -Übergänge mit $\Delta I_{k0} = I_k$.

γ -Übergänge von den Niveaus i oder k auf Zwischenniveaus j können elektrische $E1I_{ij}$ - oder magnetische $M1I_{ij}$ - oder gemischte Übergänge sein mit $\Delta I_{ij} = |I_i - I_j|, |I_i - I_j| + 1, \dots, |I_i + I_j|$.

Die *Multipolarität der γ -Strahlung*. Für ein α -emittierendes Niveau i , das durch γ -Strahlung oder Internal Conversion auf tiefere Niveaus j zerfällt, ist die totale Niveaubreite Γ_i^{total} gegeben durch

$$\Gamma_i^{\text{total}}(I_i) = \Gamma_i^\alpha(I_i) + \sum_j \Gamma_i^{\text{rad}}(\Delta I_{ij}) = \frac{\hbar}{\tau}, \quad (1)$$

mit

$$\Gamma_i^{\text{rad}}(\Delta I_{ij}) = \Gamma_i^\gamma(\Delta I_{ij}) [1 + \varepsilon_{ij}].$$

Γ^α Niveaubreite für α -Zerfall; Γ^{rad} Niveaubreite für γ -Zerfall und Internal Conversion; Γ^γ Niveaubreite für γ -Zerfall; ε_{ij} totaler Konversionskoeffizient; ΔI_{ij} Drehimpuls des Multipolfeldes, τ mittlere Lebensdauer.

Weiterhin gilt die Identität

$$\Gamma_i^{\text{rad}}(\Delta I_{ij}) / \Gamma_i^\alpha(I_i) = n_{ij}^{\text{rad}} / n_i^\alpha, \quad (2)$$

wobei n_i^α und n_{ij}^{rad} die gemessenen absoluten Intensitäten für α - und γ -Zerfall mit Internal Conversion sind. Kennt man nun Γ^α , so kann man mit Hilfe von (2) die Niveaubreite Γ^{rad} , bzw. die absolute Zerfallswahrscheinlichkeit $\Gamma^{\text{rad}}/\hbar$ bzw. Lebensdauer für γ -Emission berechnen. So wurde bereits von BETHE¹² und BELL¹³ mit Hilfe der Theorie des α -Zerfalls für den 0,609 MeV- und den 1,416 MeV-Zustand des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ die absolute Lebensdauer ermittelt.

Betrachtet man nun statt der absoluten Übergangswahrscheinlichkeit $\Gamma^{\text{rad}}/\hbar$ die auf Energie E_γ und Multipolmoment bzw. Massenzahl A „normierte Übergangswahrscheinlichkeit“ T bzw. „normierte Lebensdauer“ τ' (comparative lifetime)¹⁴ so geht (2) über in

$$T_{\text{el}} = (\Gamma_i^\alpha(I_i)/\hbar) \cdot (n_{ij}^{\text{rad}}/n_i^\alpha) \cdot E_\gamma^{-(2\Delta I_{ij}+1)} \cdot A^{-\frac{2}{3}\Delta I_{ij}} = 1/\tau'_{\text{el}} \quad (3a)$$

bei elektrischen Multipolübergängen und in

$$T_{\text{mag}} = (\Gamma_i^\alpha(I_i)/\hbar) \cdot (n_{ij}^{\text{rad}}/n_i^\alpha) \cdot E_\gamma^{-(2\Delta I_{ij}+1)} \cdot A^{-\frac{2}{3}(\Delta I_{ij}+1)} = 1/\tau'_{\text{mag}} \quad (3b)$$

bei magnetischen Multipolübergängen.

Da sich nun experimentell wie theoretisch die normierten Übergangswahrscheinlichkeiten T um den Faktor 10^4 bis 10^{10} unterscheiden,

¹² BETHE, H. A.: Rev. Mod. Phys. **9**, 69 (1937).

¹³ BELL, R. E. in: SIEGBAHN, K., s. Fußnote 5 auf S. 601.

¹⁴ GOLDBABER, M. in: SIEGBAHN, K., s. Fußnote 5 auf S. 601.

wenn sich ΔI_{ij} um eine Drehimpulseinheit ändert¹⁴, läßt sich ΔI_{ij} durch probeweises Einsetzen verschiedener Werte in (3) eindeutig bestimmen. Das in (3) eingesetzte richtige ΔI_{ij} muß die richtige Größenordnung der zu erwartenden normierten Übergangswahrscheinlichkeiten liefern. Während ein probeweise in (3) eingesetztes $\Delta I_{ij} \pm 1$ eine normierte Übergangswahrscheinlichkeit liefert, die um mehrere Größenordnungen von der zu erwartenden Übergangswahrscheinlichkeit $T(\Delta I_{ij} \pm 1)$ abweicht.

Für einen direkten γ -Übergang zum Grundzustand erhält man aus $\Delta I_{i0} = I_i$ unmittelbar Spin und Parität π_i des α -emittierenden Zustandes. Zerfällt ein Zustand i auch noch auf ein tieferes Niveau j , so läßt sich unter Umständen auch noch der Spin I_j und die Parität π_j ermitteln.

Die α -Zerfallswahrscheinlichkeit. Für die Niveaubreite $\Gamma^\alpha(I)$ gilt

$$\Gamma^\alpha(I)/\hbar = f(\omega_0, R, K, k, I) e^{-G(R, E_\alpha, I)}. \quad (4)$$

f ist der Modellfaktor und eine Funktion von:

ω_0 die korrespondenzmäßige Umlauffrequenz eines α -Teilchens im Potentialtopf des Endkernes,

R Radius des Endkernes, bei dem das Kernpotential in das Coulombpotential übergeht,

K Wellenzahl des α -Teilchens innerhalb des Endkernes,

k Wellenzahl des α -Teilchens außerhalb des Endkernes,

E_α Zerfallsenergie.

Die α -Zerfallswahrscheinlichkeit ist praktisch allein bestimmt durch den von der Zerfallsenergie E_α und dem Radius des Endkernes R sehr empfindlich abhängenden Gamow-Faktor e^{-G} .

Da der α -Zerfall nur vom Radius R des Endkernes abhängt, läßt sich die Zerfallswahrscheinlichkeit $\Gamma^\alpha(I)/\hbar$ der $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ - α -Gruppen, die alle zum gleichen $(0+)$ -End- (und Grund-) Zustand des $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ führen, durch den stets gleichen Endkern-Radius R beschreiben*.

Die in Tabelle 2 Spalte 5, angegebenen α -Zerfallswahrscheinlichkeiten $\Gamma^\alpha(I)/\hbar$ für die $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ - α -Gruppen sind für den Energiebereich $E_\alpha = 7$ bis 12 MeV mit Hilfe der Weisskopfschen¹⁵ Compound-Kern-Theorie berechnet.

Berechnet man die α -Zerfallswahrscheinlichkeit nach der Gamow-Condon-Prestonschen Theorie^{12, 16}, so kommt man zu den gleichen Er-

* Eine Abschätzung der α -Zerfallswahrscheinlichkeit mit dem Geiger-Nuttall-Gesetz führt selbst in der verbesserten semi-empirischen Form von BISWAS, S.: Phys. Rev. **75**, 530 (1949) im Energiebereich $E_\alpha = 8$ bis 11 MeV zu Abweichungen bis zum Faktor 100 und mehr von der exakten Formel (4).

¹⁵ BLATT, J. M., and V. F. WEISSKOPF: Theoretical Nuclear Physics. New York: J. Wiley & Sons 1956.

¹⁶ PRESTON, M. A.: Phys. Rev. **71**, 865 (1947); **83**, 475 (1951).

gebissen, denn diese beiden Theorien unterscheiden sich im Gamow-Faktor (d.h. im Endkernradius R) und im Modellfaktor f quantitativ praktisch nicht. Wichtig ist der Unterschied in der Grundkonzeption der beiden Theorien. In der Compound-Kern-Theorie wird bei der Berechnung des Modellfaktors f im statistischen Mittel Äquidistanz zwischen den Ausgangsniveaus mit gleichem Spin und gleicher Parität gefordert, also Termfolgen der Art

$$E = E_0 + n D,$$

wobei der mittlere Termabstand D gesetzt wird

$$D = 2\pi \hbar \omega_0.$$

Die α -Zerfallswahrscheinlichkeit ist explizit in der Weisskopf-Theorie gegeben durch

$$\Gamma^\alpha(I) = D/2\pi \frac{4 K \kappa(R)}{K^2 + [\kappa(R) + \frac{1}{2} \kappa'(R)/\kappa(R)]^2} \exp \left[-2 \int_R^{r_0} \kappa(r) dr \right] \quad (5)$$

mit

$$\kappa^2(r) = 2M_\alpha/\hbar^2 (I(I+1)\hbar^2/2M_\alpha r^2 + 2 \cdot Z e^2/r - E_\alpha),$$

$$\kappa'(r) = \frac{\partial}{\partial r} \kappa(r) \quad \text{und} \quad r = r_0 \quad \text{bei} \quad \kappa(r_0) = 0,$$

M_α reduzierte Masse des α -Teilchens, Z Ordnungszahl des Endkernes.

Für die Berechnungen in Tabelle 2 ist für die $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')\text{-}\alpha$ -Gruppen $R = 9,15 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$; $K = 1,0 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-1}$; $Z_{\text{Endkern}} = 82$; $D = 600 \text{ keV}$ bzw. $D = 190 \text{ keV}$.

Eine nähere Begründung für die eingesetzten Werte von D wird weiter unten gegeben. Es ist auch nur die Größenordnung von D von Bedeutung*.

Formel (5) läßt sich auch schreiben

$$\Gamma^\alpha(I) = \Gamma^\alpha(0) \cdot \Phi(I) \quad (6)$$

wobei $\Phi(I)$ die in Tabelle 1 für eine mittlere Zerfallsenergie

von 9,5 MeV berechnete Drehimpulsfunktion ist. Da sie nur eine geringfügige Änderung von $\Gamma^\alpha(0)$ bewirkt, kann sie zur Auffindung der Drehimpulsänderung für γ -Übergänge ΔI_{ij} in Formel (3) zuerst vernachlässigt werden; sie wird anschließend als nachträgliche Korrektur berücksichtigt.

Tabelle 1. Drehimpulsfunktion für $Z_{\text{Endkern}} = 82$, $E_\alpha = 9,5 \text{ MeV}$, $R = 9,15 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$

I	0	1	2	3	4
$\Phi(I)$	1	0,74	0,435	0,190	0,060

* Alle Polonium- α -Strahler mit $A \geq 212$ lassen sich gut durch einen mittleren Niveauabstand von $D = 500 \text{ keV}$ und gleichen Radius für alle Blei-Endisotope beschreiben¹⁵.

Tabelle 2. *Ergebnisse der Berechnungen der normierten Übergangswahrscheinlichkeit für γ -Emission*

Spalte 1: Energie des Niveaus; Spalte 2: α -Zerfallsenergie; Spalte 3: absolute α -Intensität; Spalte 4: Niveauabst und; Spalte 5: α -Zerfallswahrscheinlichkeit $\Gamma_{\alpha}(0)/h$; Spalte 6: γ -Zerfallsenergie; Spalte 7: absolute γ -Intensität; Spalte 8: normierte γ -Übergangswahrscheinlichkeit bzw. Lebensdauer; Spalte 9: Spin und Parität.

1	2	3	4	5	6	7	8	9
E MeV	E_{α} MeV	w_{α}^2 10^{-6}	D keV	$\log \Gamma_{\alpha}^0/h$	E_{γ} MeV	w_{γ}^2 %	$\log T = -\log \tau$	Spin und Parität
0	7,8266	10^8	600	3,66	—	—	—	0+
0,609	8,4347	0,43	600	5,35	0,609	33^3	8,84 (E2)	2+
1,281	9,1082	0,45	600	7,00	1,281	$1,8^6$	7,70 (E2)	2+
1,416	9,2375	22	600	7,26	Konv. 0,806	$0,35^6$ $1,2^6$	7,35 (E2)	0+ $\tau_e = 3,5 \cdot 10^{-10}$ sec $\tau_{\gamma} = 1,0 \cdot 10^{-10}$ sec
1,848	9,6693	1,35	600	8,20	1,848 1,238	$2,0^3$ $6,0^3$	7,56 (E2) 12,21 (M1)	2+
2,017	9,8413	0,35	600	8,53	2,017 1,408	$0,4^6$ $\leq 0,7^6$	7,58 (E2) $\leq 12,02$ (M1) 8,6 (E2)	2+
2,438	10,2653	(1,67)	600	9,40	2,438	(2,2) ⁹	(8,09) (E2)	2+
2,510	10,3395	0,38	190 (600)	9,05 (9,55)	1,900	$\leq 1,1^6$	$\leq 7,76$ (E2) 10,40 (E1) 8,26 (E2) 10,90 (E1)	4+ 3-
2,700	10,5226	1,12	190	9,34	2,700	$0,1^9$	9,32 (E1) 6,66 (E2)	1- 2+
2,886	10,7058	0,23	190	9,64	2,886	$0,03^9$	9,70 (E1) 6,89 (E2)	1- 2+
3,046	10,87	$\sim 0,1$	600	10,45	3,046	$\sim 0,03^9$	$\sim 8,0$ (E2)	2+

Ergebnis der Berechnungen. Das Ergebnis der Berechnungen mit Hilfe von (3) und (5) ist in Tabelle 2 angegeben. Die dort in Spalte 7 angegebenen Intensitätsangaben der schwächeren γ -Linien sind bezogen auf die Intensitäten der genauer bekannten stärkeren Nachbarlinien. Für die Berechnungen von $\log T$ (Spalte 8) muß noch die Drehimpulsfunktion des α -Zerfalls der Tabelle 1 berücksichtigt werden. Das daraus folgende Termschema von $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ gibt Fig. 3 wieder.

Da bei den Berechnungen nur relativ energiereiche γ -Übergänge niederer Multipolarität vorkommen, läßt sich, bis auf den 1,416 MeV- $0 \rightarrow 0$ -Übergang, die Internal Conversion vernachlässigen. Es ist also

$$I^{\text{rad}} = I^{\gamma} \quad \text{und} \quad n^{\text{rad}} = n^{\gamma}.$$

Diese Vernachlässigung bringt z.B. eine Abweichung von I^{rad} in (3) um 2% bei dem am stärksten konvertierten 0,609 MeV- γ -Übergang.

Über die Spins von nicht- α -emittierenden Niveaus ließ sich mit Hilfe von (3) leider nichts aussagen, da sich aus dem bisher vorliegenden experimentellen Material keine γ -Übergänge oder Konversionslinien von α -emittierenden Niveaus auf tiefere nicht- α -emittierende Niveaus eindeutig zuordnen lassen.

3. Diskussion

Die γ -Zerfallswahrscheinlichkeiten. Wenn man die in Tabelle 2, Spalte 8, angegebenen normierten Übergangswahrscheinlichkeiten für $E2$ - und $M1$ -Übergänge mit den Resultaten von GOLDHABER¹⁴ (ebenso auch BERGSTRÖM¹⁷) vergleicht, so stellt man eine überraschend gute Übereinstimmung mit den Übergangswahrscheinlichkeiten benachbarter Kerne fest.

Der 0,609 MeV- $E2$ -Übergang des ersten angeregten Zustandes zeigt eine Erhöhung der Übergangswahrscheinlichkeit um mehr als eine Größenordnung gegenüber den übrigen $E2$ -Übergängen und fällt in das Gebiet der kollektiven Übergänge^{14, 18}. Alle anderen $E2$ -Übergänge dagegen fallen in das Gebiet der Ein-Teilchen-Übergänge, stimmen überein mit den Nachbarkernen und streuen um den Mittelwert innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen höchstens um den Faktor 2.

Die $M1$ -Übergänge stimmen ebenfalls mit den Nachbarkernen überein. Eine geringe $E2$ -Beimischung kann nicht mit Hilfe von (3) entschieden werden.

Weiterhin stimmt die berechnete Lebensdauer des 1,416 MeV- $(0+)$ -Zustandes, welcher energetisch auf der Hälfte des berechneten Energie-

¹⁷ BERGSTRÖM, I., u. G. ANDERSSON: Ark. Fys. **12**, 415 (1957).

¹⁸ ALDER, K., A. BOHR, T. HUUS, B. MOTTELSON u. A. WINNER: Rev. Mod. Phys. **28**, 432 (1956).

bereiches liegt, gut mit dem experimentellen Wert¹¹ überein (berechneter Wert $0,8 \cdot 10^{-10}$ sec, experimenteller Wert $(2,3 \pm 1,9) \cdot 10^{-10}$ sec).

Diese überraschend gute Übereinstimmung der berechneten Übergangswahrscheinlichkeiten mit den zu erwartenden und die geringe Streuung der Werte kann als eine Bestätigung der in (3) und (5) gemachten Voraussetzung angesehen werden.

Starke Schwankungen der Wahrscheinlichkeit für die Formation eines α -Teilchens scheinen also nicht aufzutreten, wenn man von einer jeweiligen Kompensierung der α -Teilchen-Formationswahrscheinlichkeit mit der γ -Zerfallswahrscheinlichkeit in den angeregten Zuständen absieht.

Die α -Teilchen-Formationswahrscheinlichkeit wurde in (3) und (5) von der Größenordnung ≈ 1 gesetzt. Ein kleinerer Wert vermindert alle in Tabelle 2 angegebenen normierten γ -Zerfallswahrscheinlichkeiten T um den gleichen Faktor. Aus der richtigen Größenordnung der erhaltenen γ -Zerfallswahrscheinlichkeiten und der richtig erhaltenen mittleren Lebensdauer des $1,416 \text{ MeV}-(0+)$ -Zustandes läßt sich jedoch folgern, daß die α -Teilchen-Formationswahrscheinlichkeit nicht $\ll 1$ gesetzt werden darf.

Diese Konstanz der α -Teilchen-Formationswahrscheinlichkeit ist ein Argument für die Richtigkeit der Paritätszuordnung $\pi_k = (-1)^{I_k+1}$ der nicht- α -emittierenden Zustände. Während nämlich die absolute γ -Zerfallswahrscheinlichkeit z. B. für $E2$ -Übergänge im Energiebereich $0,6 \text{ MeV}$ bis $3,0 \text{ MeV}$ um den Faktor 3000 ansteigt, erhöht sich im gleichen Bereich die α -Zerfallswahrscheinlichkeit um den Faktor 10^5 . Die in Fig. 1 und Fig. 3 eingezeichneten nicht- α -emittierenden Zustände oberhalb $1,2 \text{ MeV}$, die durch intensive γ -Strahlung zerfallen, müßten deshalb einen meßbaren α -Zerfall aufweisen, selbst wenn die α -Teilchen-Formationswahrscheinlichkeit in diesen Zuständen stark reduziert und die Paritätszuordnung falsch wäre.

Während sich nach Formel (3) ohne weiteres für $E2$ -, $E3$ -, ..., und $M1$ -, $M2$ -, ..., Übergänge entscheiden läßt, ist das für $E1$ -Übergänge nicht eindeutig möglich, da nicht genügend experimentelles Vergleichsmaterial vorliegt, und diese außerdem stark von der Theorie der Einzelteilchen-Übergänge abweichen^{14, 18, 19}. Deshalb wurde bei den Zuständen von $2,700 \text{ MeV}$ und $2,886 \text{ MeV}$ keine eindeutige Zuordnung für den Spin ($1-$) getroffen. Die normierten Übergangswahrscheinlichkeiten für $E1$ -Übergänge von diesen Zuständen von $\log T(E1) = 9,32$ und $\log T(E1) = 9,70$ haben in der Umgebung von Pb^{208} nur eine einzige Vergleichsmöglichkeit mit einem $E1$ -Übergang des Pb^{209} mit $\log T(E1) = 9,6^{20}$. Auch beim $2,510 \text{ MeV}$ -Niveau wurde deswegen von einer Ent-

¹⁹ STEPHENS, F., F. ASARO u. I. PERLMAN: Phys. Rev. **96**, 1569 (1954); **100**, 1543 (1955).

²⁰ STROMINGER, D., F. STEPHENS u. J. O. RASMUSSEN: Phys. Rev. **103**, 748 (1956).

scheidung zwischen (3-) und (4+) abgesehen. Bei diesem Niveau macht sich für I^2/\hbar die Drehimpulsfunktion $\Phi(I)$ bemerkbar.

α -Zerfall auf angeregte Zustände von Pb^{210} (RaD). Die von ELLIS⁷, WOLFSON und uns⁹ gefundene γ -Linie von 2,606 MeV (Intensität

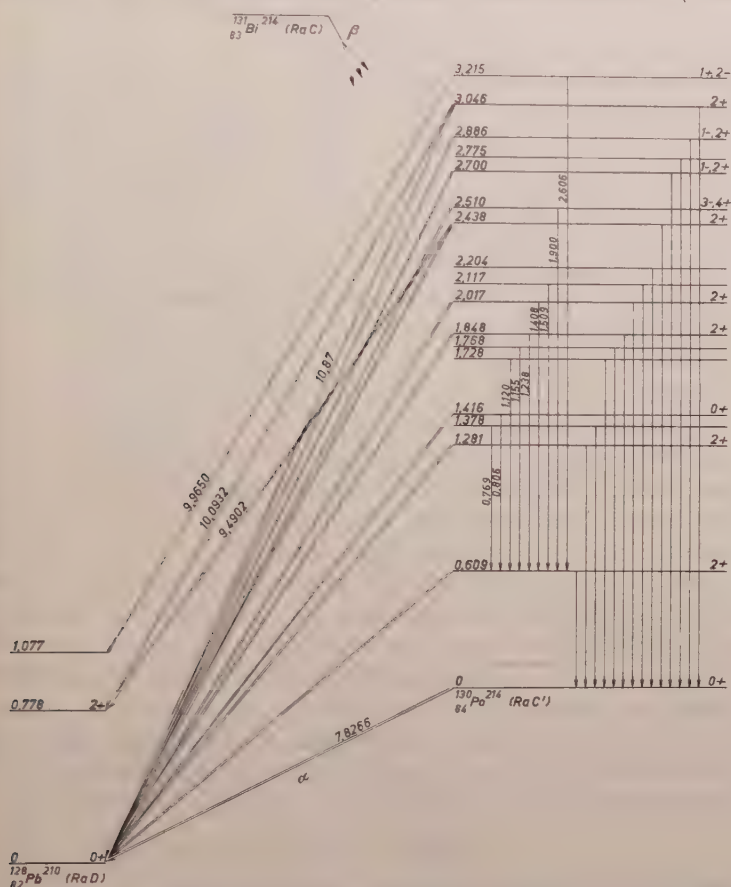


Fig. 3. Termschema von $Po^{214}(RaC')$. Die Zerfallsenergien der α -Gruppen, die von angeregten Zuständen des $Po^{214}(RaC')$ zum Grundzustand des Pb^{210} (RaD) übergehen, wurden bis auf die schwache 10,87 MeV-Gruppe nicht eingetragen (s. Tabelle 2, Spalte 2)

$\leq 0,04\%$) läßt sich in das Zerfallsschema bei 2,6 MeV nur schwer einordnen, da sich aus den bisher bekannten γ -Linien und insbesondere aus den zahlreichen sorgfältig gemessenen Konversionslinien⁷ kein Übergang zum 0,609 MeV-Zustand finden läßt. Deshalb liegt es nahe, daß die 2,606 MeV-Linie ein Kaskadenübergang von einem Niveau von 3,215 MeV zum ersten angeregten 0,609 MeV-Zustand ist*.

* Über einen schwachen direkten γ -Zerfall des 3,215 MeV-Zustandes zum Grundzustand siehe auch K. MAYER, Fußnote 9 auf S. 601. (Erscheint in Kürze.)

Ebenso schwierig lassen sich die in Fig. 1 angegebenen α -emittierenden Niveaus von 1,663 MeV ($E_\alpha = 9,4902$ MeV, $n_\alpha = 0,38 \cdot 10^{-6}$), 2,138 MeV ($E_\alpha = 9,9650$ MeV, $n_\alpha = 1,06 \cdot 10^{-6}$) und 2,268 MeV ($E_\alpha = 10,0932$ MeV, $n_\alpha = 0,36 \cdot 10^{-6}$) einordnen, die sich aus den Rutherfordschen α -Gruppen unter der Voraussetzung ergeben, daß diese Niveaus durch α -Emission zum Grundzustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ übergehen.

Diese drei α -Gruppen lassen sich hingegen zwanglos in das Zerfallsschema einordnen, wenn man sie als α -Übergänge der 2,438 MeV-, 3,046 MeV- und 3,215 MeV-Zustände zu den beiden ersten von MAYER-KUCKUK² (s. Fig. 1) gefundenen angeregten Zuständen des $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ ansieht (s. Fig. 3). Die energetische Übereinstimmung mit MAYER-KUCKUK ist sehr gut (MAYER-KUCKUK: $0,783 \pm 0,010$ MeV und $1,080 \pm 0,015$ MeV, diese Arbeit: $0,778$ MeV und $1,077$ MeV). Jedoch läßt sich die Existenz des Niveaus von 1,663 MeV ($E_\alpha = 9,4902$ MeV) wegen der Vielzahl von K- und L-Konversionslinien im Energiebereich $\sim 1,7$ MeV nicht eindeutig ausschließen.

Aus dem Verzweigungsverhältnis der α -Übergänge in den Grund- und in den ersten angeregten Zustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ ergibt sich, daß die absolute Übergangswahrscheinlichkeit für den α -Zerfall in den angeregten Zustand um den Faktor $A = 15$ bis 30 zu groß ist, wenn man für den Radius R des Endkernes im angeregten Zustand den gleichen Wert wie für den Grundzustand voraussetzt. Dabei ist zu berücksichtigen, daß für den α -Übergang in den angeregten Zustand des Tochterkernes mehrere Drehimpulsänderungen ΔI^π möglich sind. Eine „Bevorzugung“ des α -Überganges um den Faktor $A = 15$ bis 30 erfordert eine Vergrößerung von R im angeregten Zustand um 9% gegenüber dem Wert des Grundzustandes von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$, falls der Endkern im angeregten Zustand als kugelförmig angesehen wird. Nach der empirischen Regel von ASARO und PERLMAN²¹ über die Behinderung $H = A^{-1}$ von α -Übergängen in den angeregten Zustand des Tochterkernes

$$\log H = aZ - b$$

(Z Ordnungszahl, a und b Konstanten) extrapoliert man auf eine „Bevorzugung“ um den Faktor $A \approx 45$.

Das 3,215 MeV-Niveau kann auch durch α -Zerfall zum ersten angeregten 0,778 MeV-Niveau des $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$ zerfallen, wobei die Zerfallsenergie identisch ist mit der des α -Zerfalls des 2,438 MeV-Zustandes zum Grundzustand von $\text{Pb}^{210}(\text{RaD})$. (Deshalb ist in Tabelle 2 die α -Intensitätsangabe des 2,438 MeV-Zustandes in Klammern gesetzt. Ebenso die Intensitätsangabe für den γ -Zerfall dieses Zustandes, weil ein γ -Zerfall des 3,046 MeV-Zustandes von 2,437 MeV zum 0,609 MeV-Zustand möglich ist.) Da ein α -Zerfall des 3,215 MeV-Zustandes zum

²¹ ASARO, F., u. I. PERLMAN: Phys. Rev. **91**, 763 (1953).

Grundzustand von Pb^{210} (RaD) nicht vorkommt, muß dieser paritätsverboten sein.

Systematik der α -emittierenden Niveaus. Bereits RUTHERFORD¹ versuchte, sämtliche (α -emittierende und nicht- α -emittierende) Zustände

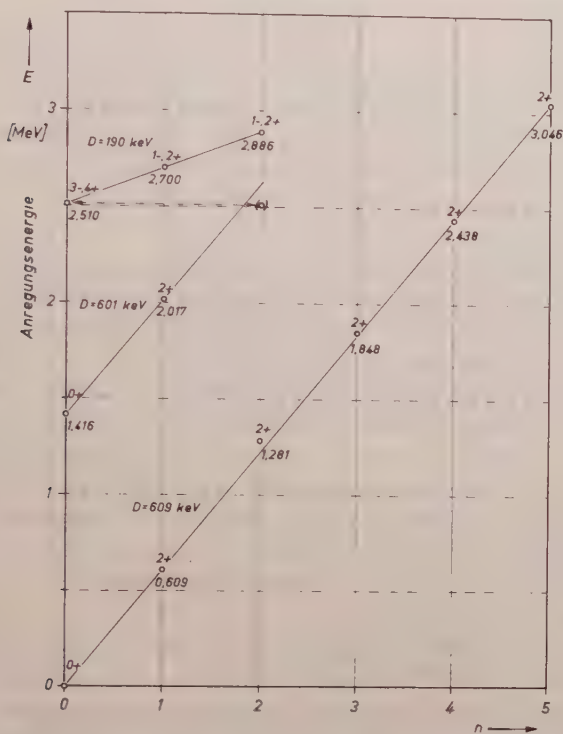


Fig. 4. Systematik der α -emittierten Zustände (einschließlich Grundzustand) von Po^{214} (RaC'), die durch α -Emission zum Grundzustand von Pb^{210} (RaD) zerfallen. Ordinate: Anregungsenergie E ; Abszisse: Ganze Zahl n aus der Termfolge $E = E_0 + nD$, $n = 0, 1, 2, \dots$

des Po^{214} (RaC') nach einem Gesetz der Form

$$E = E_0 + nD_0 + E_1 + mD_1$$

zu ordnen. Aus dem Termschema des Po^{214} (RaC') (Fig. 3) folgt nun, daß sich die zum Grundzustand von Pb^{210} (RaD) α -emittierenden Zustände des Po^{214} (RaC') in streng äquidistante Termfolgen der Form

$$E = E_0 + nD \quad (n = 0, 1, 2, \dots)$$

einordnen lassen. Diese Termfolgen sind in Fig. 4 dargestellt. Die Abweichungen von der Linearität sind von der Größenordnung 1 bis 2%. Nur beim zweiten α -emittierenden Niveau von 1,281 MeV, das in die

längste Termfolge gehört (bis $n=5$), beträgt die Abweichung von der Linearität $+5\%$. Die von der Weisskopfschen Theorie des α -Zerfalls in (5) gemachte Voraussetzung von äquidistanten Niveaus ist also formal streng erfüllt. Aus diesem Grunde wurde bei den Berechnungen von I^α in Tabelle 2 als Niveauabstand $D=600$ keV und $D=190$ keV gesetzt.

Diese äquidistanten Termfolgen der α -emittierenden Niveaus lassen sich nicht ohne weiteres als harmonische Quadrupol-Vibrationen einer Kollektivbewegung interpretieren, denn direkte γ -Zerfälle von höheren Niveaus zum Grundzustand sind nach dem „Unified Nuclear Model“¹⁸ verboten, weil sich die Vibrations-Quantenzahl nur um eine Einheit ändern darf.

In der Termfolge mit $D=609$ keV zerfällt das $1,848$ MeV- $(2+)$ -Niveau ($n=3$) durch einen $1,238$ MeV- $M1$ -Übergang zum ersten angeregten $0,609$ MeV- $(2+)$ -Niveau. Dieser $1,238$ MeV-Übergang hätte, wenn er als reiner $E2$ -Übergang interpretiert würde, ein $\log T(E2)=8,9$, was einer kollektiven Übergangswahrscheinlichkeit entsprechen würde. Im Sinne des „Unified Nuclear Model“ ist dieser Übergang bei Vibrationszuständen als $M1$ -Übergang verboten, ebenso ist er als Vibrations-Doppelquanten- $E2$ -Zerfall verboten und darf nicht kollektiv beschleunigt sein. Als Ein-Teilchen- $M1$ -Übergang kann er höchstens eine $E2$ -Beimischung haben. NIELSEN²² schließt aus dem K/L -Konversionsverhältnis mit Hilfe der Slivschen Korrekturen für endliche Kernaushdehnung auf einen $M1$ -Übergang.

Der $1,408$ MeV-Kaskadenzerfall des $2,017$ MeV- $(2+)$ -Zustandes zum $0,609$ MeV- $(2+)$ -Niveau kann statt $M1$ - auch als $E2$ -Übergang interpretiert werden. Die normierte γ -Zerfallswahrscheinlichkeit beträgt dann $\log T(E2) \approx 8,6$; dieses ist von der gleichen Größe wie der „beschleunigte“ $E2$ -Zerfall des $0,609$ MeV-Niveaus und ist um den Faktor 10 größer als die normierte γ -Zerfallswahrscheinlichkeit des direkten Ein-Teilchen- $E2$ -Zerfalls des $2,017$ MeV-Niveaus zum Grundzustand ($\log T(E2)=7,6$).

Das Energieniveauverhältnis (Energy Level Ratio) des $2,017$ MeV- $(2+)$ -Zustandes zum $0,609$ MeV-Niveau beträgt $3,31$. Dieses läßt sich nicht ohne weiteres deuten als Konsequenz einer kollektiven Rotationsbewegung im Sinne des „Unified Nuclear Model“, selbst wenn der $1,408$ MeV-Übergang ein reiner „beschleunigter“ $E2$ -Übergang ist. Das folgt daher, daß erstens der $2,017$ MeV- $(2+)$ -Zustand als kollektives Rotationsniveau ein $(4+)$ -Zustand sein müßte, und daß zweitens das Energieniveauverhältnis nach der kollektiven Theorie und den bisherigen

²² NIELSEN, K. O., O. B. NIELSEN u. M. A. WAGGONER: Nuclear Phys. **2**, 476 (1956/57).

experimentellen Ergebnissen für die Massenzahl $A = 214$ nicht 3,33 sondern $\leq 2,8$ sein sollte¹⁸.

Ich danke Herrn Prof. O. HAXEL und Herrn Prof. J. H. D. JENSEN für wertvolle anregende und fördernde Diskussionen.

Anmerkung bei der Korrektur: Nach Drucklegung dieser Arbeit erschienen zwei weitere experimentelle Beiträge zum Termschema des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$.

In einer Untersuchung über γ -Übergänge geringer Energie aus dem Energiebereich oberhalb 2,4 MeV kommen DZELEPOV, B. S., S. A. SESTOPALOVA und I. UCHEVATKIN (Nuclear Phys. **5**, 413 (1958)] zu Ergebnissen, die in guter Übereinstimmung mit unseren Messungen stehen⁹.

BISHOP, G. R. [Nuclear Phys. **5**, 358 (1958)] führte γ - γ -Koinzidenzmessungen am $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ durch, und kommt bei einigen Niveaus zu den in Fig. 3 geforderten Spizuordnungen, sofern sich bei der geringen Energieauflösung des Szintillationszählers die γ -Linien gut trennen ließen. Leider werden von BISHOP die Meßergebnisse mehrerer oben zitierter Autoren nicht diskutiert.

Weiterhin wird in Kürze eine mit guter Energieauflösung vorgenommene Analyse des γ -Spektrums des $\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$ von K. MAYER, Max-Planck-Institut Heidelberg, erscheinen (s. Fußnote * auf S. 609 und Fußnote 9 auf S. 601). Die in Tabelle 2, Spalte 6, zur Berechnung verwendeten γ -Linien stimmen mit jener Untersuchung überein.

Aus dem Institut für Experimentalphysik der Universität Kiel

Die Linienprofile thermisch angeregter Heliumlinien*

Von

H. WULFF

Mit 9 Figuren im Text

(Eingegangen am 11. September 1957)

In einem thermisch leuchtenden He-Plasma ($T = 30000^\circ$; $n_e = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) werden die Profile der verbreiterten He- und He⁺-Linien sowie Seriangrenzkontinua gemessen. Die He⁺-Linie $\lambda = 4686$ verbreitert nach der Holtsmark'schen Theorie. Auch die Profile der He-Linien $\lambda\lambda = 4922, 4472, 4358$ und 4026 \AA können nach der statistischen Theorie gedeutet werden. Andererseits sind die Linien $\lambda\lambda = 5016, 4713, 4121, 4048, 3965$ und 3889 \AA überwiegend durch Stoßdämpfung verbreitert. Die Seriangrenzen rücken infolge der Linienverbreiterung nach langen Wellen hin vor. Aus der Beziehung von INGLIS-TELLER läßt sich in einfachster Weise der Elektronendruck bestimmen.

I. Experimenteller Teil

a) Das Entladungsrohr und die Technik der Impulsentladung

Für die thermische Anregung des Heliums werden hohe Temperaturen benötigt, die große elektrische Leistung erfordern. Man wird daher zweckmäßigerweise Impulsbetrieb wählen, bei dem Stromstärken von 1000 Amp und darüber zur Anwendung kommen können. Bei derartig hohen Stromstärken dürfen die Elektrodenoberflächen nicht zu klein sein, damit die Zerstäubung des Elektrodenmaterials in mäßigen Grenzen bleibt. Aus diesem Grunde wurde ein der Fig. 1 entsprechendes Rohr benutzt. Die Erweiterung des Rohrquerschnittes vor den Elektroden hat dort eine Erniedrigung der Stromdichte und damit der Temperatur zur Folge, wodurch eine Verunreinigung des Heliumplasmas durch das Elektrodenmaterial vollständig vermieden wird. Ein solches Rohr kann die erforderlichen Stromstärken im Impulsbetrieb vertragen, wenn die Dauer der Einzelimpulse etwa 10^{-2} sec bei einer Impulsfrequenz von 2 min^{-1} nicht übersteigt. Andererseits darf die Entladungszeit 10^{-4} sec nicht unterschreiten, da sonst die Einstellzeit stationärer Bedingungen nicht mehr klein gegen die Beobachtungszeit ist. Deswegen wurde eine Entladungszeit von $7 \cdot 10^{-4} \text{ sec}$ gewählt. Die erforderlichen Stromimpulse lieferten zwei Kondensatorbatterien, die bis zu einer Spannung

* Die Arbeit wurde von der General Electric Research Laboratory, Schenectady, New York, USA, in großzügiger Weise unterstützt.

von 5,5 kV aufgeladen wurden (s. Fig. 2). Die Zündung erfolgte durch Kurzschluß der Zündfunkenstrecke mit einem Hochfrequenzfunken.

Für eine stationäre Bogenentladung ist ein gleichbleibender Entladungsstrom erforderlich. Dieser wurde in hinreichender Näherung mit

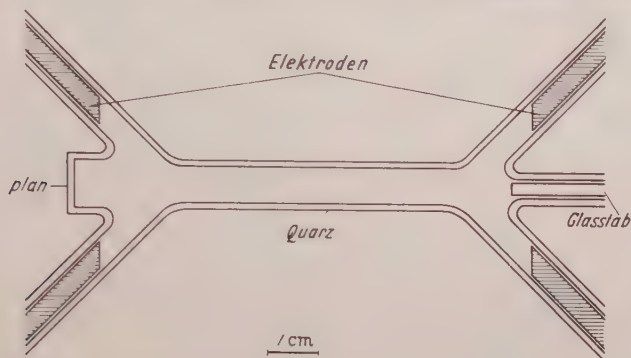


Fig. 1. Das Entladungsrohr. Die wassergekühlten Elektroden sind aus Reinaluminium gefertigt. Quarz und Aluminiumteile sind mit einem durch Polymerisation härtenden Kunstharz verbunden (Araldit). Das Volumen ist abgeschlossen. Der Glasstab verringert das Kaltvolumen. Durch das Planfenster wurde „end-on“ beobachtet

der aus Fig. 2 ersichtlichen Schaltanordnung erreicht. Dabei überlagert sich der Strom der RC-Entladung des einen Kreises mit der gedämpften Schwingung des zweiten Kreises. Da die nach dem ersten Nulldurchgang

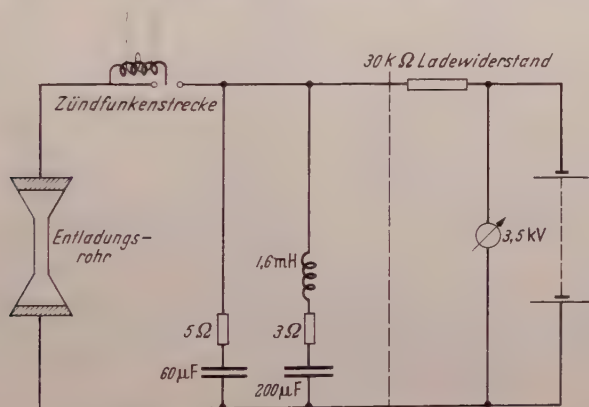


Fig. 2. Schaltschema für die Impulsentladung

des Stromes auftretende Spannung zur erneuten Zündung nicht ausreicht, wird die zweite Halbwelle unterdrückt, wie man aus dem Oszillogramm (Fig. 3a) erkennt. Ob ein solcher Entladungsstrom tatsächlich stationäre Entladungsbedingungen zur Folge hat, läßt sich erkennen, wenn man die Lichtemission des Plasmas zeitlich auflöst. Hierzu wurde

das mit Filtern monochromatisierte Licht der Entladung auf eine Photozelle gegeben und der dadurch ausgelöste Photostrom oszillographisch aufgenommen (s. Fig. 3 b). Aus dem Oszillogramm des Photostroms bei der Wellenlänge einer wegen ihrer hohen Anregungsenergie sehr temperaturempfindlichen He II-Linie ($\lambda = 4686 \text{ \AA}$) kann geschlossen werden,

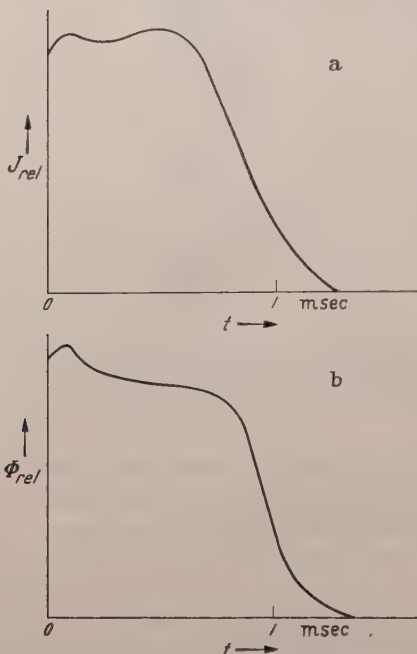


Fig. 3 a u. b. a Oszillogramm des tatsächlichen Stromverlaufs. b Photostrom der H I-Linie $\lambda = 5876 \text{ \AA}$. Die Schwankungen des Flächeninhaltes unter der Kurve lagen unter der Meßgenauigkeit von 2 bis 3%. Die Form des Daches zeigte geringe Schwankungen

daß die Temperatur hinreichend konstant bleibt. Da der Photostrom einer He I-Linie der Größe $N_e^2/T^{\frac{3}{2}}$ (N_e Elektronendichte) proportional ist*, lassen entsprechende Oszillogramme den Schluß zu, daß auch N_e hinreichend konstant ist. Insgesamt dürfte die Änderung von N_e während der Zeit, in der ein konstanter Strom fließt, sicher nicht größer als 10% sein.

b) Die Aufnahme der Spektren und das Verfahren ihrer Auswertung

Für die Aufnahme der Spektren im sichtbaren Bereich standen ein Steinheil 3-Prismen-Glas-Apparat mit einer Lineardispersion von $19,5 \text{ \AA/mm}$ bei 5000 \AA und $6,5 \text{ \AA/mm}$ bei 4000 \AA sowie ein Rowland-Gitter in Paschen-Aufstellung mit einer Lineardispersion in der zweiten Ordnung von $1,28 \text{ \AA/mm}$ im Gittergegenpunkt zur Verfügung. Die Auflösung der Spektralapparate war so groß, daß es in keinem Falle

nötig war, die Verzerrung des Linienprofils durch den Apparat zu berücksichtigen. Die Seriengrenzen im UV-Gebiet wurden mit einem Steinheil 1-Prismen-Quarz-Apparat mit einer Lineardispersion von 12 \AA/mm bei 3000 \AA aufgenommen.

* Die Gesamtintensität einer He I-Linie aus optisch dünner Schicht ist $\int I(\lambda) d\lambda = CN_0 \exp \frac{-\chi_{0,n}}{kT}$. Kombination mit der Saha-Gleichung ergibt $\int I(\lambda) d\lambda = C' \frac{N_e^2}{T^{\frac{3}{2}}} \exp \frac{-(\chi_{0,n} - \chi_0)}{kT}$. Bei den hier in Betracht kommenden Temperaturen ist $kT \geq 3(\chi_0 - \chi_{0,n})$, und die relative Änderung der e -Funktion ist gegenüber der relativen Änderung von $T^{\frac{3}{2}}$ zu vernachlässigen. ($\chi_{0,n}$ Anregungsenergie, χ_0 Ionisationsenergie, N_0 Anzahl neutraler Teilchen im cm^3).

Zur Festlegung der Schwärzungskurve wurde das durch Stufenfilter definiert abgeschwächte Licht der Entladung selbst verwendet. Bei Gebrauch der Prismenapparate war das Filter vor dem Spalt, bei Verwendung des Rowland-Gitters vor der Platte angebracht.

Die Photometrierung der Linien geschah mit einem Zeiß-Schnellphotometer, für die Seriengrenzen wurde ein Registrierphotometer benutzt.

Um die Verschiebung der thermisch angeregten Heliumlinien genau messen zu können, wurden nacheinander in demselben Entladungsrohr eine thermische Entladung und eine Geißler-Entladung gebrannt. Die optische Anordnung blieb unverändert. Bei Verwendung der Prismenapparate sind wegen der Krümmung der Spektrallinien das thermische Spektrum und das Geißler-Spektrum überlagert worden. Die Prüfung der gleichmäßigen Ausleuchtung erfolgte durch Aufnahme des Spektrums ohne Filter.

Das Multiplett bei $\lambda = 5876 \text{ \AA}$ (D_3 -Linie) erscheint bei Anregung im Geißler-Rohr in zwei Komponenten aufgelöst. Bei thermischer Anregung des He-Plasmas verschmilzt das Multiplett zu einem Komplex, der nun Selbstumkehr zeigt. Deshalb wurde von einer Auswertung dieser Linie Abstand genommen. Auch die anderen Multipletts des Triplettsystems erscheinen nicht aufgelöst und werden im folgenden wie einzelne Linien behandelt.

II. Temperatur, Ionisationsgrad und Elektronendichte des Heliumplasmas

a) Die Beeinflussung der Heliumanregung und der Temperatur des Heliumplasmas durch Fremdgase

Wie bekannt, liegen die Anregungsspannungen des Heliumatoms gegenüber denjenigen anderer Atome extrem hoch. Daher übernehmen leicht Verunreinigungen die Anregungsenergie von den Heliumatomen, wobei sie gleichzeitig wegen leichterer Elektronenabgabe die Temperatur des Plasmas herabsetzen. Eine ausführliche Diskussion unterschiedlicher Mischungsverhältnisse von Helium mit verschiedenen Verunreinigungen läßt erkennen — wie dies auch a priori zu erwarten war — daß, um eine Anregung des Heliums zu erhalten, die Teilchendichte der Verunreinigungen wesentlich kleiner sein muß als die im Plasma gewünschte Elektronendichte. Damit war auf die Reinheit des verwendeten Heliums entscheidendes Gewicht zu legen.

b) Bestimmung der Temperatur und des Ionisationsgrades

Die Temperatur wurde aus dem gemessenen Intensitätsverhältnis der He II-Linie $\lambda = 4686 \text{ \AA}$ und der He I-Linie $\lambda = 4713 \text{ \AA}$ ermittelt. Für beide Linien ließ sich nachweisen, daß sie aus optisch dünner Schicht emittiert wurden. Damit konnten die hierfür gültigen Bezeichnungen für die Linienintensitäten als Funktion der Temperatur herangezogen werden.

Unter Benutzung der Werte für die Übergangswahrscheinlichkeiten $A_{4686} = 1,43 \cdot 10^8 \text{ sec}^{-1}$ und $A_{4713} = 3,3 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$ der statistischen Gewichte der oberen Terme $g_{II} = 32$ und $g_I = 3$, der Anregungsspannungen $\chi_{II} = 51 \text{ eV}$ und $\chi_I = 23,9 \text{ eV}$ sowie der Elektronendichte $N_e = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ergab sich aus dem experimentell ermittelten Verhältnis der Linienintensitäten von 0,69 eine Temperatur von

$$T = 30000^\circ \text{ K} \pm 1500^\circ \text{ K}.$$

Messungen an dem Linienpaar He II $\lambda = 3203$ und He I $\lambda = 3187 \text{ \AA}$ ergaben nach der gleichen Methode die gleiche Temperatur. Die Temperaturbestimmung ist wegen der großen Differenz der Anregungsenergien beider Linien recht genau, man erhält jedoch nur einen Mittelwert der Temperatur über die Entladungszeit eines Impulses. Schätzungsweise betrug die Temperaturänderung während eines Impulses maximal $\pm 1500^\circ \text{ K}$. Dagegen konnte der obige Mittelwert der Temperatur über viele Impulse konstant gehalten werden. Die Messungen erfolgten stets an einer mittleren Zone des Entladungskanals, deren Gleichmäßigkeit mit der sehr temperaturempfindlichen He II-Linie 4686 \AA an Hand von stigmatischen Aufnahmen überprüft wurde.

Nach Division der Saha-Gleichung für Helium durch den Elektronendruck N_e ergibt sich das Verhältnis der Anzahl der einfach ionisierten Teilchen zur Anzahl der neutralen Teilchen zu

$$\frac{N_{\text{He}}^+}{N_{\text{He}}^0} = \frac{N_e}{N_{\text{He}}^0} = 140.$$

Dem entspricht ein Ionisationsgrad von

$$\frac{N_{\text{He}}^+}{N_{\text{He}}^0 + N_{\text{He}}^+} = \frac{140}{141} = 99,3 \, \%.$$

Man bestätigt nachträglich aus der Saha-Gleichung für einfach ionisiertes Helium, daß das Helium nicht nennenswert zweifach ionisiert ist ($N^{++}/N^+ \approx 10^{-3}$).

Das Helium ist also praktisch vollständig einfach ionisiert. Wie die Temperaturbestimmung ist dieses Ergebnis von dem genauen Wert der Elektronendichte relativ unabhängig.

Unter Zugrundelegung der soeben ermittelten Werte von Temperatur und Ionisationsgrad des Plasmas soll im folgenden die Elektronendichte bestimmt werden.

c) Bestimmung der Elektronendichte

Um die Elektronendichte bestimmen zu können, schematisieren wir die Verhältnisse im Entladungsrohr so, daß wir annehmen, es gäbe während der Entladung nur zwei Zonen einheitlicher Temperatur,

nämlich das „Brennvolumen“ mit der Temperatur T_B und das „Kaltvolumen“ mit der Temperatur T_K . Das Brennvolumen ist das Volumen zwischen den Elektroden. Es wurde aus der Geometrie des Rohres berechnet und beträgt $x \cdot V$, wenn x der Bruchteil des Gesamtvolumens V ist. Das Kaltvolumen ist das übrige Volumen, also die Differenz zwischen dem Gesamtvolumen V und dem Brennvolumen, und beträgt $(1 - x) \cdot V$. V wurde mit Hilfe der Beziehung $p \cdot v = \text{const}$ durch Vergleich mit einem bekannten Volumen ermittelt. Bezeichnen wir noch die Teilchenzahl pro cm^3 im Brennvolumen mit N_B , im Kaltvolumen mit N_K und bei Zimmertemperatur im Rohr mit N_Z , so ist die Bilanz der Teilchenzahl während der Entladung gegeben durch die Gleichung

$$(1 - x) \cdot V \cdot N_K + x \cdot V \cdot N_B = N_Z \cdot V + x \cdot V \cdot N_e. \quad (1)$$

Die linke Seite dieser Gleichung gibt die Anzahl der Teilchen im Kalt- und Brennvolumen an. Das erste Glied der rechten Seite liefert die Teilchenzahl im Gesamtvolumen bei Zimmertemperatur, das zweite Glied berücksichtigt die Vermehrung dieser Teilchenzahl durch Ionisation im Brennvolumen. Wir setzen nun voraus, daß im Entladungsrohr Druckgleichgewicht herrscht. Dann ist $p = N_K \cdot k \cdot T_K = N_B \cdot k \cdot T_B$ oder $N_K/N_B = T_B/T_K = \Theta$. Eliminiert man mit dieser Beziehung N_K aus Gl. (1) und löst nach N_B auf, so ergibt sich

$$N_B = \frac{N_Z + x \cdot N_e}{\Theta + x(1 - \Theta)}. \quad (2)$$

Entsprechend einem Druck von 68 Torr beträgt N_Z bei Zimmertemperatur $N_Z = 2,23 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Dieser Wert ist groß gegen jeden möglichen Wert von N_e . Da x kleiner als 1 ist, darf daher $x \cdot N_e$ gegenüber N_Z vernachlässigt werden. Da weiterhin T_B viel größer als T_K , also $T_B/T_K = \Theta$ groß gegen 1 ist, kann im Nenner von Gl. (2) 1 gegen Θ vernachlässigt werden. Somit gilt

$$N_B = \frac{N_Z}{\Theta(1 - x)}. \quad (3)$$

Mit $N_Z = 2,23 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $T_B = 30000^\circ \text{ K}$, $T_K = T_Z = 295^\circ \text{ K}$ ($\Theta = 102$) und $x = 0,66$ ergibt sich $N_B = 6,4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Wegen der praktisch vollständigen Ionisation ist $N_B = 2N_e$ und somit $N_e = 3,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

Um den Fehler dieses Ergebnisses zu erhalten, diskutieren wir zunächst den Einfluß der vorgenommenen Schematisierung. Die Einteilung in Kalt- und Brennvolumen ist dadurch gerechtfertigt, daß das Kaltvolumen das sehr enge, etwa 1 mm breite Volumen zwischen den Elektroden und dem Quarzkegelmantel darstellt. Dieses wird — wie eine Abschätzung zeigte — während der Brenndauer von 10^{-3} sec durch Wärmeleitung praktisch nicht erhitzt. Daher konnten wir $T_K = T_Z = 295^\circ \text{ K}$ setzen.

Da das Brennvolumen doppelt so groß wie das Kaltvolumen ist $\left(\frac{1-x}{x} = 2\right)$, wird die Teilchendichte im Kaltvolumen während des Brennens gegenüber der Dichte bei Zimmertemperatur etwa verdreifacht, also $7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Zur Abschätzung des Fehlers, der in der Annahme einer einheitlichen Temperatur des Brennvolumens liegt, nehmen wir an, daß das halbe Brennvolumen eine Temperatur von nur 15000° K habe. In diesem Bereich befänden sich dann etwa $2 \cdot 6,4 \cdot 10^{16}$ Teilchen im cm^3 . Es müßten dazu $6,4 \cdot 10^{16} \cdot \frac{1}{2} \cdot V_B$ Teilchen aus dem Kaltvolumen in das Brennvolumen übergetreten sein. Bei einer Teilchendichte im Kaltvolumen von $7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ nähmen wir $6,4 \cdot 10^{16} \cdot \frac{1}{2} \cdot V_B = 6,4 \cdot 10^{16} \cdot V_K$ Teilchen bei der Temperatur des Kaltvolumens einen Raum ein, der nur rund $\frac{1}{100}$ des Kaltvolumens ausmacht. Die Größe $(1-x)$ würde also rund um 1% anwachsen.

Die schematische Einteilung des Gesamtvolumens in Kalt- und Brennvolumen dürfte somit gerechtfertigt sein. Überdies müssen sich die möglichen Fehler von Θ und $(1-x)$ zum Teil gegenseitig aufheben, da Θ nur kleiner, $(1-x)$ nur größer werden kann. Wir schätzen daher, daß der Fehler einschließlich des durch die Bestimmung des Kaltvolumens $(1-x) \cdot V$ verursachten Fehlers $\pm 20\%$ nicht übersteigt.

Wir bemerken noch, daß das soeben durchgeführte Verfahren der Elektronendichtebestimmung der erste Schritt eines Iterationsverfahrens ist. Mit der Elektronendichte nullter Näherung von $3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ wurde die Temperatur aus dem Intensitätsverhältnis der Linien bestimmt. Mit dieser Temperatur ergab sich dann nach Gl. (3) als erste Näherung $N_e = 3,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, ein Wert, der sich bereits innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Wert nullter Näherung deckt*.

Weitere von obigen Verfahren unabhängige Elektronendichtebestimmungen ergeben sich aus der Anwendung der Linienverbreiterungstheorien im folgenden Abschnitt III.

III. Die Anwendung der Theorie der Linienbeeinflussung auf die Heliumlinien

a) Bestimmung der Elektronendichte aus dem Vorrücken der Seriengrenzkontinua

Übersicht. Die Mikrofelder von Ionen und Elektronen bewirken, daß die hohen Serienglieder so stark verbreitern, daß sie vor der theoretischen Seriengrenze mit $n = \infty$ verschmelzen (n = Hauptquantenzahl des oberen Terms der Linien). Die Seriengrenze wird also vorverlegt. Unter der Voraussetzung der Wasserstoffähnlichkeit der letzten Serienglieder läßt sich nach O. R. INGLIS und E. TELLER (1, S. 325) die Elektronendichte des Plasmas aus dem letzten getrennt erkennbaren Serienglied abschätzen. INGLIS und TELLER setzen dazu

$$\frac{3}{2} a_0 n_m^2 e F = \frac{1}{2} \frac{e^2}{a_0 n_m^3} \quad (4)$$

* Der in der nullten Näherung benutzte Wert von N_e ist für das Verfahren ohne wesentliche Bedeutung.

1 UNSÖLD, A.: Physik der Sternatmosphären, 2. Aufl. Berlin: Springer 1955.

Darin bedeuten a_0 Bohrscher Atomradius, n_m Hauptquantenzahl des oberen Terms der letzten getrennt erkennbaren Linie, e Elementarladung, F mittlere Feldstärke der Mikrofelder am Ort des Leuchtatoms.

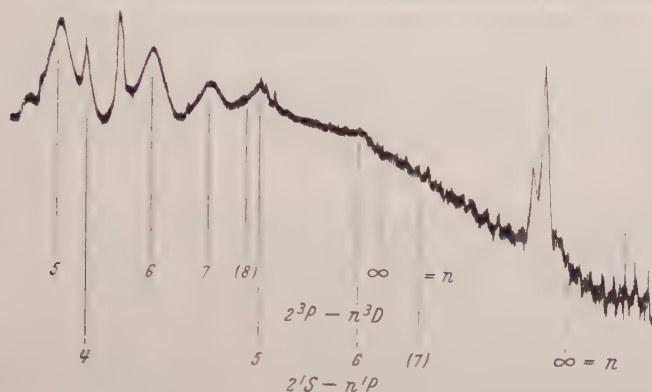


Fig. 4. Der Verlauf der Seriengrenzkontinua für die He I-Serie $2^3P - n^3D$ und $2^1S - n^1P$

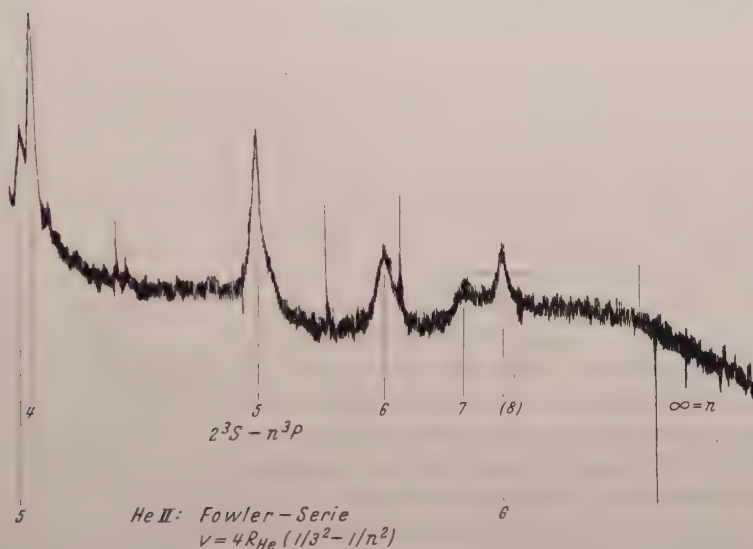


Fig. 5. Der Verlauf der Seriengrenzkontinua für die He I-Serie $2^3S - n^3P$ und die Fowler-Serie He II $4 R_{\text{He}} \left(\frac{1}{3^2} - \frac{1}{n^2} \right)$

Die linke Seite stellt die Energie des Atomdipols im Felde F dar. Die rechte Seite ist die halbe Energiedifferenz zwischen der Energie des Terms mit der Hauptquantenzahl n_m und der Energie seiner beiden benachbarten Terme. Die Elektronendichte N_e ergibt sich indem man in Gl. (4) F durch die aus der Statistischen Theorie hergeleitete Beziehung $F = 3,7 \cdot e \cdot N_e^{\frac{1}{3}}$ ersetzt.

Resultat. In der Serie $2^3P - n^3D$ (Fig. 4) ist als letztes getrennt erkennbares Serienglied mit Sicherheit die Linie mit $n=7$ vorhanden. Die durch $2^1S - 5^1P$ überdeckte Linie mit $n=8$ scheint angedeutet zu sein. In der Serie $2^1S - n^1P$ (Fig. 4) ist die Linie mit $n=6$, in $2^3S - n^3P$ die mit $n=7$ sicher noch getrennt erkennbar. Der aus der Serie $2^1S - n^1P$ folgende Wert $n_m=6$ muß als unsicher gelten, da diese Serie sehr schwach ist und das siebente Serienglied wahrscheinlich aus diesem Grund nicht mehr in Erscheinung tritt, wie es auch in der Fowler-Serie (Fig. 5) der Fall ist.

Nach INGLIS und TELLER ergibt sich für $n_m=7$ $N_e=4,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und für $n_m=8$ $N_e=1,5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und somit das Mittel $N_e=3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

Die Fowler-Serie erfordert eine besondere Bemerkung. Da ihr 6. Glied schwächer ist als das 6. Glied der Serie $2^3S - n^3P$, treten das 7. und die weiteren Glieder nicht mehr aus dem Kontinuum der He I-Serien und der frei-frei-Übergänge hervor. Der weite Abstand des 5. und 6. Seriengliedes gegenüber den analogen Linien von $2^3S - n^3P$ lassen aber erkennen, daß die Verschmelzung erst bei relativ hohen Seriengliedern erfolgt. Tatsächlich hat man — unter Zugrundelegung des Wertes $N_e=3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ — eine Verschmelzung auch erst beim 10. oder 11. Glied zu erwarten, wie eine Erweiterung der Inglis-Teller-Beziehung auf wasserstoffähnliche Ionen der Kernladungszahl $Z=2$ zeigt.

Nachdem wir im Vorstehenden die Verschmelzung der hohen Serienglieder zur Elektronendichteabschätzung benutzt haben, wollen wir uns nun der Anwendung detaillierterer Theorien zuwenden.

b) Allgemeines zur Theorie der Linienverbreiterung und Linienverschiebung²

Die allgemeine Theorie der Linienverschiebung und der Linienverbreiterung ist nur in ihren Grenzfällen, der statistischen Theorie und der Stoßdämpfungstheorie, praktisch anwendbar. In der statistischen Theorie wird angenommen, daß das strahlende Teilchen ständig unter dem Einfluß der quasistatischen Felder von Mikroteilchen steht. Unter Berücksichtigung der statistischen Verteilung der Felder entsteht so die Linienkontur. Die Stoßdämpfungstheorie hingegen idealisiert den Störvorgang als Stoß, der in vernachlässigbar kurzer Zeit die ungestörte Ausstrahlung unterbricht. Die Fourier-Analyse dieser statistisch zerhackten ungestörten Strahlung liefert die Linienkontur. In einem Plasma der hier untersuchten Art ist die Störung ganz überwiegend auf Stark-Effekte zurückzuführen, die durch Mikrofelder von Ionen und Elektronen hervorgerufen werden.

² Wegen aller Einzelheiten verweisen wir auf¹. Dort finden sich zahlreiche Hinweise auf die Originalliteratur.

Das Übergangsgebiet beider Verbreiterungstheorien wird durch eine „Grenze“ $\Delta\omega_g$ gekennzeichnet, die im Falle linearen Stark-Effektes durch die Beziehung

$$\Delta\omega_g = \frac{v^2}{2\pi^3 \cdot C_L}, \quad (5)$$

im Falle quadratischen Stark-Effekts durch die Beziehung

$$\Delta\omega_g = \left(\frac{8v^4}{\pi^5 C_Q} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (6)$$

gegeben ist (1, S. 312)³.

$\Delta\omega_g$, die Grenze, bedeutet den Frequenzabstand des Übergangsgebietes von der unbeeinflussten Linie in Kreisfrequenzeinheiten, v die Relativgeschwindigkeit von gestörtem Teilchen und Störteilchen und C_L und C_Q die Stark-Effekt-Konstanten.

Wegen des Auftretens von v in den obigen Ausdrücken ist die Lage des Übergangsgebietes für Ionen und Elektronen als Störteilchen verschieden. Die Stoßdämpfungstheorie ist zuständig im Bereich der unbeeinflussten Linie bis zur Grenze, die Statistische Theorie entsprechend im Bereich außerhalb der Grenze.

Bei genügend kleinen Elektronendichten sind die Linien meist so schmal, daß sie für Elektronen und Ionen im Bereich der Stoßdämpfungstheorie liegen*. Ihre Verbreiterung geht dann im Falle linearen Stark-Effekts proportional $1/v$, im Falle quadratischen Stark-Effekts proportional $v^{\frac{1}{3}}$; im ersten Falle haben also die Ionen, im zweiten die Elektronen den relativ größeren Einfluß. Es ist daher wahrscheinlich — zumindest stellt es eine plausible Arbeitshypothese dar —, daß der dominierende Einfluß der Ionen bzw. der Elektronen auch dann erhalten bleibt, wenn die Elektronendichte so groß ist und demzufolge die Linien so breit sind, daß sie hinsichtlich ihrer Beeinflussung durch Ionen im statistischen Bereich liegen**. Mit anderen Worten: In erster Näherung kann bei linearem Stark-Effekt der Einfluß der Elektronen, bei quadratischem Stark-Effekt der Einfluß der Ionen vernachlässigt werden (s. dazu auch¹, S. 322 und 327). Die nachfolgend beschriebenen Messungen bestätigen die Richtigkeit dieser Überlegungen.

Wir werden zunächst eine Linie des ionisierten Heliums untersuchen und uns dann den Linien des neutralen Heliums zuwenden.

* Die eventuelle konkurrierende Doppler-Verbreiterung ist in diesem Zusammenhang nicht von Interesse.

** Nach Gl. (5) und (6) liegt der statistische Bereich für Ionen sehr viel näher an der unbeeinflussten Linie als der statistische Bereich für Elektronen.

³ Diese Klärung der Zuständigkeitsbereiche gelang 1940 unabhängig voneinander G. BURKHARDT [Z. Physik **115**, 592 (1940)] und L. SPITZER [Phys. Rev. **58**, 348 (1940)].

c) Die wasserstoffähnliche He II-Linie $\lambda = 4686 \text{ \AA}$

$\lambda = 4686 \text{ \AA}$ ist das erste Glied der Fowler-Serie, dessen Wellenlänge λ durch die bekannte Beziehung $\frac{1}{\lambda} = 4R_{\text{He}} \left(\frac{1}{3^2} - \frac{1}{4^2} \right)$ gegeben ist. Der Stark-Effekt dieser Linie ist vom linearen Typus und mit dem von H_α vergleichbar.

Das Übergangsgebiet beider Verbreiterungstheorien liegt nach Gl. (5) für He-Ionen bei $0,3 \text{ \AA}$ Abstand von der Linienmitte, für Elektronen weit außerhalb der Linie. Die He-Ionen beeinflussen also die Linie außerhalb

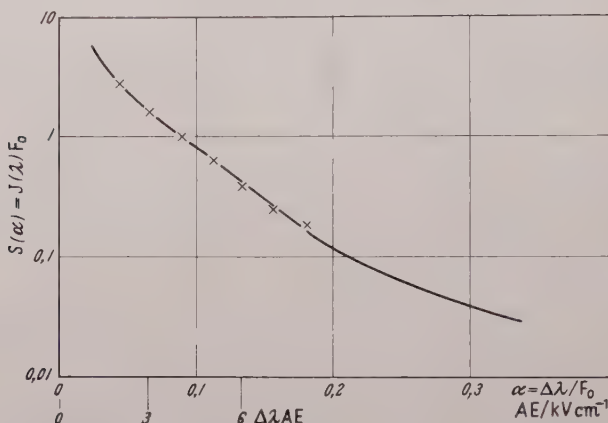


Fig. 6. Die ausgezogene Kurve stellt das nach der statistischen Theorie berechnete Profil von He II = 4686 \AA dar. Die Meßpunkte sind als Kreuze eingezeichnet. $\alpha = \Delta\lambda/F_0$ ist der auf die Einheit der Normalfeldstärke bezogene Abstand von der Linienmitte

des Doppler-Kerns nach der statistischen Theorie, die Elektronen hingegen nach der Stoßdämpfungstheorie. Die Wirkung der Elektronen soll vernachlässigt werden (s. dazu IIIb).

A. UNSÖLD⁴ hat das Profil von $\lambda = 4686 \text{ \AA}$ nach der statistischen Theorie berechnet. Das theoretische Profil enthält implizite die Normalfeldstärke F_0 der statistischen Theorie, die mit der Elektronendichte durch die Beziehung $F_0 = 2,61 \cdot e \cdot N_e^{\frac{2}{3}}$ verknüpft ist. (F_0 kann gedeutet werden als die Feldstärke, die dem mittleren Abstand zweier Störteilchen r_0 entspricht: $F_0 = \frac{e}{r_0^2}$).

F_0 wurde so gewählt, daß das theoretische und das (auf $\int I(\lambda) d\lambda = 1$ normierte) experimentelle Profil möglichst gut übereinstimmten (Fig. 6). Es ergab sich eine Normalfeldstärke von 43 kV/cm ($\pm 10\%$). Dem entspricht eine Elektronendichte von $N_e = 3,9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ($\pm 15\%$).

⁴ UNSÖLD, A.: Z. Astrophys. **23**, 75 (1944).

d) He I-Linien, die vorwiegend linearen Stark-Effekt zeigen:
Die diffuse Singulett- und die diffuse Triplettsreihe

$$\begin{aligned} \lambda = 4922 \text{ \AA}, \quad 2^1P - 4^1D, \quad \lambda = 4472 \text{ \AA}, \quad 2^3P - 4^3D, \\ \lambda = 4358 \text{ \AA}, \quad 2^1P - 5^1D, \quad \lambda = 4026 \text{ \AA}, \quad 2^3P - 5^3D. \end{aligned}$$

Der Stark-Effekt dieser Linien ist kompliziert. Da die oberen Terme und die den oberen Termen der Linien nächstbenachbarten Terme (hier die „Störterme“ $4F$ bzw. $5F$) relativ eng beieinanderliegen, geht die Umwandlung des Stark-Effektes vom quadratischen zum linearen Typus schon bei entsprechend kleinen Feldstärken vonstatten. J. S. FOSTER⁵

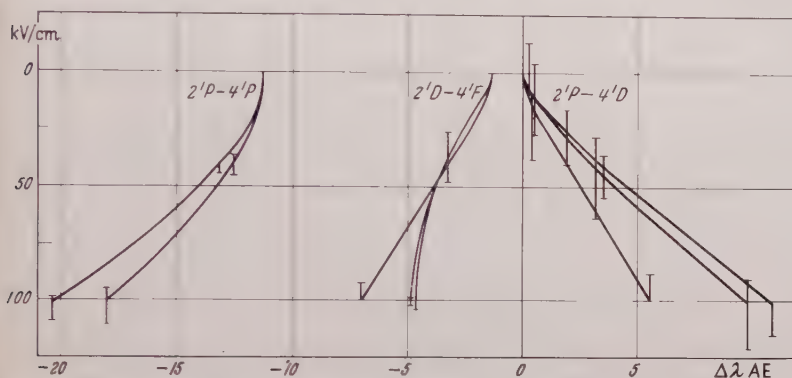


Fig. 7. Der Stark-Effekt der Linie $\lambda = 4922 \text{ \AA}$ nach FOSTER. Bei 15 kV/cm geht der Stark-Effekt der Komponente $2^1P - 4^1D$ vom quadratischen in den linearen über. Mit wachsender Feldstärke erscheinen „verbotene“ Komponenten. Bei 10, 40 und 100 kV/cm sind die relativen Intensitäten eingezeichnet und zwar die Intensitäten der σ -Komponenten nach oben, die der π -Komponenten nach unten. Für die anderen in diesem Abschnitt behandelten Linien gibt es entsprechende Diagramme

hat den Stark-Effekt dieser Linien im einzelnen berechnet und beobachtet. Die Fig. 7 veranschaulicht als Beispiel das Verhalten der Linie $\lambda = 4922 \text{ \AA}$ im elektrischen Feld. Die unter dem Einfluß des Feldes hervortretenden „verbotenen“ Komponenten zusammen mit den erlaubten Übergängen geben ein Aufspaltungsbild, das in groben Zügen dem der entsprechenden Balmer-Linien, also H_β und H_γ ähnlich ist. So fehlt z. B. bei den Linien $\lambda = 4922 \text{ \AA}$ und $\lambda = 4472 \text{ \AA}$ wie bei H_β die Mittelkomponente, die dagegen bei $\lambda = 4358 \text{ \AA}$ und $\lambda = 4026 \text{ \AA}$ wie bei H_γ vorhanden ist.

Wegen der offensichtlichen Schwierigkeit, die theoretischen Linienprofile zu berechnen, beschränken wir uns darauf, mit Hilfe der oben bereits ermittelten Werte der Elektronendichte das Profil der den Übergängen entsprechenden Balmer-Linien nach der statistischen Theorie zu berechnen und zu zeigen, daß diese Profile mit den Profilen der He-Linien vergleichbar sind (Fig. 8a–c). Die Heliumlinien liegen — wie

⁵ FOSTER, J. S.: Proc. Roy. Soc. Lond. **117**, 137 (1928).

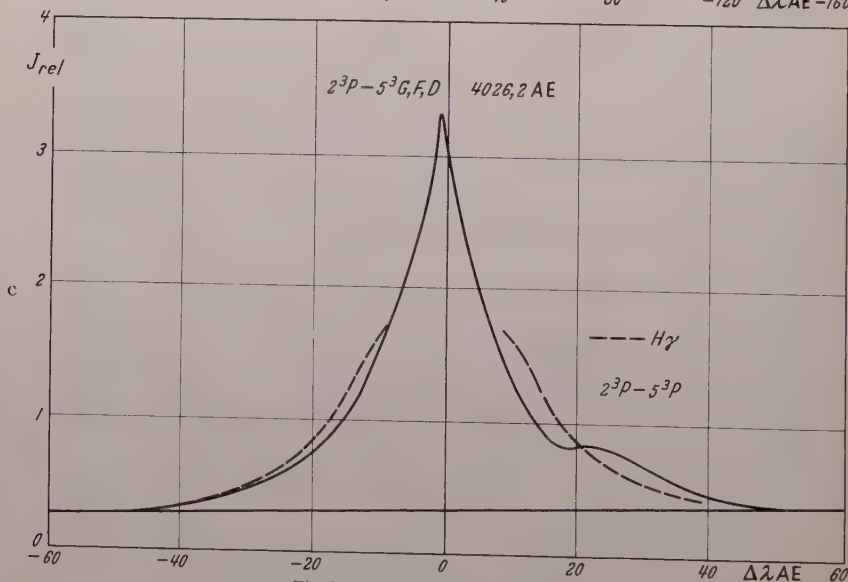
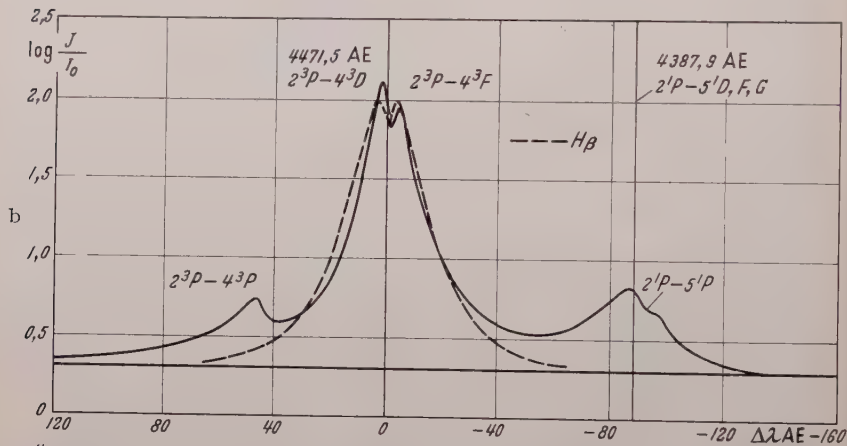
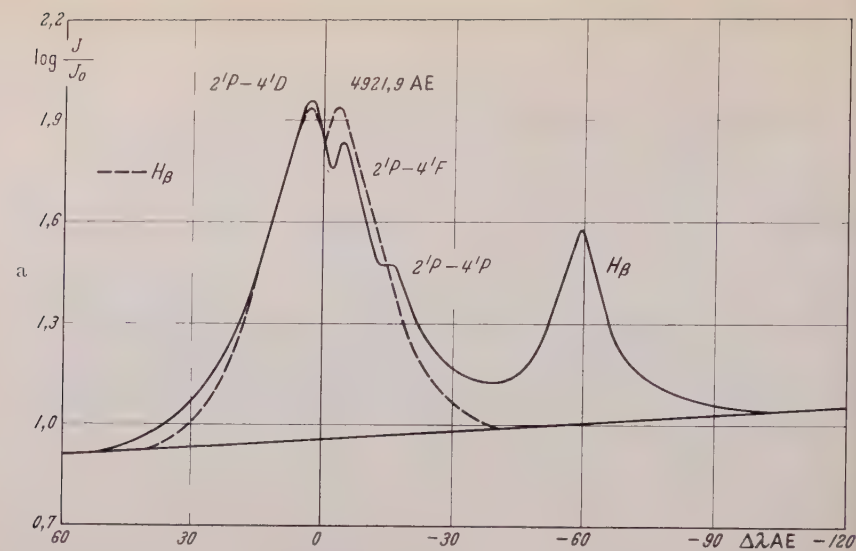


Fig. 8 a-c (Unterschrift auf S. 627)

auch die Balmer-Linien — hinsichtlich der Störung durch Ionen praktisch ganz im Bereich der statistischen Theorie, wovon wir uns an Hand einer Rechnung von A. UNSÖLD überzeugten (4, S. 82 ff.).

Der Berechnung der theoretischen Balmer-Profile legten wir die Normalfeldstärke $F_0 = 39 \text{ kV/cm}$, die einer Elektronendichte $N_e = 3,2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ entspricht, zugrunde.

H_β selbst kann mit den Heliumlinien nicht verglichen werden (Fig. 8a). Da das Anregungsmaximum von H_β bei etwa 17000° K liegt, ist die Linienintensität während des Stromabfalls am Ende des Impulses groß, also während eines Zustandes, in dem Temperatur und die Elektronendichte niedriger sind als die aus den Heliumlinien ermittelten. Tatsächlich ergibt eine Abschätzung der Elektronendichte aus der Halbwertsbreite von H_β , daß $N_e < 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ sein muß.

Wir kehren zu den He-Linien zurück. Bemerkenswert ist, daß außer den verbotenen $P-F$ -Übergängen, die auch in Sternspektren beobachtet werden, die $P-P$ -Übergänge in Erscheinung treten (Fig. 8a—c). Diese sind ebenfalls bei den auf $\lambda = 4922 \text{ \AA}$ und $\lambda = 4472 \text{ \AA}$ folgenden Seriengliedern getrennt erkennbar, während die $P-F$ -Übergänge mit den erlaubten Übergängen zu einem Komplex verschmelzen.

c) He I-Linien, die vorwiegend quadratischen Stark-Effekt zeigen:

Die Linien der Hauptserien und der scharfen Nebenserien

$$\lambda = 5048 \text{ \AA}, \quad 2^1P - 4^1S, \quad \lambda = 5016 \text{ \AA}, \quad 2^1S - 3^1P,$$

$$\lambda = 4713 \text{ \AA}, \quad 2^3P - 4^3S, \quad \lambda = 4121 \text{ \AA}, \quad 2^3P - 5^3S,$$

$$\lambda = 3965 \text{ \AA}, \quad 2^1S - 4^1P, \quad \lambda = 3889 \text{ \AA}, \quad 2^3S - 3^3P.$$

Die in diesem Abschnitt behandelten Linien haben im Gegensatz zu den soeben betrachteten diffusen Linien quadratischen Stark-Effekt bis zu Feldstärken, die höher, zum Teil wesentlich höher sind als die aus der Kontur der He II-Linie ermittelte Normalfeldstärke von $F_0 = 43 \text{ kV/cm}$.

Hinsichtlich der Störung durch Elektronen liegen alle Linien im Bereich der Stoßdämpfungstheorie ($\Delta\omega_g$ liegt in der Größenordnung von 100 \AA). Bei Stoßdämpfung durch quadratischen Stark-Effekt ergeben sich nach E. LINDHOLM⁶ (s. auch¹, S. 302 ff.) die folgenden Zusammenhänge zwischen der ganzen Halbwertsbreite $\Delta\lambda_H$ bzw. der Verschiebung

⁶ LINDHOLM, E.: Diss. Uppsala 1942.

Fig. 8 a—c. Die experimentellen Linienprofile (ausgezogen) der He-Linien $\lambda\lambda 4922, 4472, 4358$ und 4026 \AA im Vergleich zu dem Profil der entsprechenden auf gleiche Gesamtintensität normierten Wasserstofflinien (letzttere sind nach der statistischen Theorie für das experimentell ermittelte n_e berechnet)

$\Delta\lambda_V$ und der Elektronendichte

$$\Delta\lambda_H = 6,18 \frac{\lambda^2}{c} C^{\frac{2}{3}} v^{\frac{1}{3}} N_e \quad (7)$$

$$\Delta\lambda_V = 5,33 \frac{\lambda^2}{c} C^{\frac{2}{3}} v^{\frac{1}{3}} N_e \quad (8)$$

(c = Lichtgeschwindigkeit, C = Stark-Effekt-Konstante).

Nach der Theorie erfolgt ein „Stoß“, wenn das Störteilchen am Leuchtatome in einem Abstand vorbeifliegt, der von der Größenordnung des Weißkopfschen Stoßradius ϱ_0 ist (¹, S. 301 ff.). Für quadratischen Stark-Effekt gilt $\varrho_0 = \left(\frac{\pi C}{v \cdot 0,64} \right)^{\frac{1}{3}}$. Beim Stoß treten also Feldstärken von der Größenordnung e/ϱ_0^2 auf. Wir nennen e/ϱ_0^2 die „Stoßfeldstärke“ F_{St} und geben ihre Werte für die Linien dieses Abschnitts in Spalte 4 der Tabelle 1 an.

Tabelle 1

1	2	3	4	5	6	7	8
λ in Å	Übergang	Stark-Effekt-Konstante C in cm	Stoßfeldstärke F_{St} in kV/cm	CF_{St}^2 in cm ⁻¹	Term-differenz in cm ⁻¹	$\frac{\Delta\lambda_H}{\Delta\lambda_V}$	N_e in cm ⁻³
3889	$2^3S - 3^3P$	$0,8 \cdot 10^{-4}$	$4,00 \cdot 10^3$	1280	537	2,9	$3,6 \cdot 10^{16} \pm 15\%$
5016	$2^1S - 3^1P$	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$1,47 \cdot 10^3$	760	104	2,8	$2,1 \cdot 10^{16} \pm 15\%$
3965	$2^1S - 4^1P$	$36,5 \cdot 10^{-4}$	$0,31 \cdot 10^3$	350	40	2,9	$0,5 \cdot 10^{16} \pm 15\%$
4713	$2^3P - 4^3S$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$1,65 \cdot 10^3$	820	919	2,0	$4,2 \cdot 10^{16} \pm 15\%$
4121	$2^3P - 5^3S$	$18,4 \cdot 10^{-4}$	$0,495 \cdot 10^3$	450	451	2,2	$3,4 \cdot 10^{16} \pm 15\%$
5048	$2^1P - 4^1S$	$5,5 \cdot 10^{-4}$	$1,11 \cdot 10^3$	675	506	2,2	$3,5 \cdot 10^{16} \pm 20\%$

Die Werte der Stark-Effekt-Konstanten sind der unter ⁶ zitierten Arbeit und der in der Z. Physik **66**, 377 (1930) erschienenen Arbeit von K. SJÖGREN entnommen.

Wir betrachten zunächst die Linie $\lambda = 3889$ Å (Fig. 9a). Diese spaltet in diskreten Feldern bis zu 400 kV/cm nicht auf, sie wird nur verschoben. Für derartige Linien liefert die Theorie der Stoßdämpfung stets symmetrische Linienprofile (Dispersionsprofile). Die quasistatische Statistische Theorie dagegen ergibt auch für nicht aufspaltende Linien asymmetrische Konturen. Der Pfeil in Fig. 9a gibt wie in allen weiteren Figuren die Grenze zwischen der statistischen Theorie und der Stoßdämpfungstheorie für He-Ionen an. Die Grenze für die Störung durch Elektronen liegt weit außerhalb des Linienprofils. Wegen der Lage der Grenze dürfte die Asymmetrie der Linie zum Teil durch die beginnende quasistatische Einwirkung der He-Ionen zustande kommen. Dafür spricht, daß die Linien in den Fig. 9a–f noch weiter im Übergangsbereich liegen und zugleich asymmetrischer sind*. Wir ignorieren die

* Es muß allerdings berücksichtigt werden, daß die Asymmetrie möglicherweise durch die Elektronendichteänderung während des Stromabfalls am Ende des Impulses mitverursacht wird.

Asymmetrie der Linie und berechneten die Elektronendichte nach der Stoßdämpfungstheorie aus der Halbwertsbreite ohne Berücksichtigung der Mitwirkung der Ionen*. Der Einfluß der Doppler-Verbreiterung

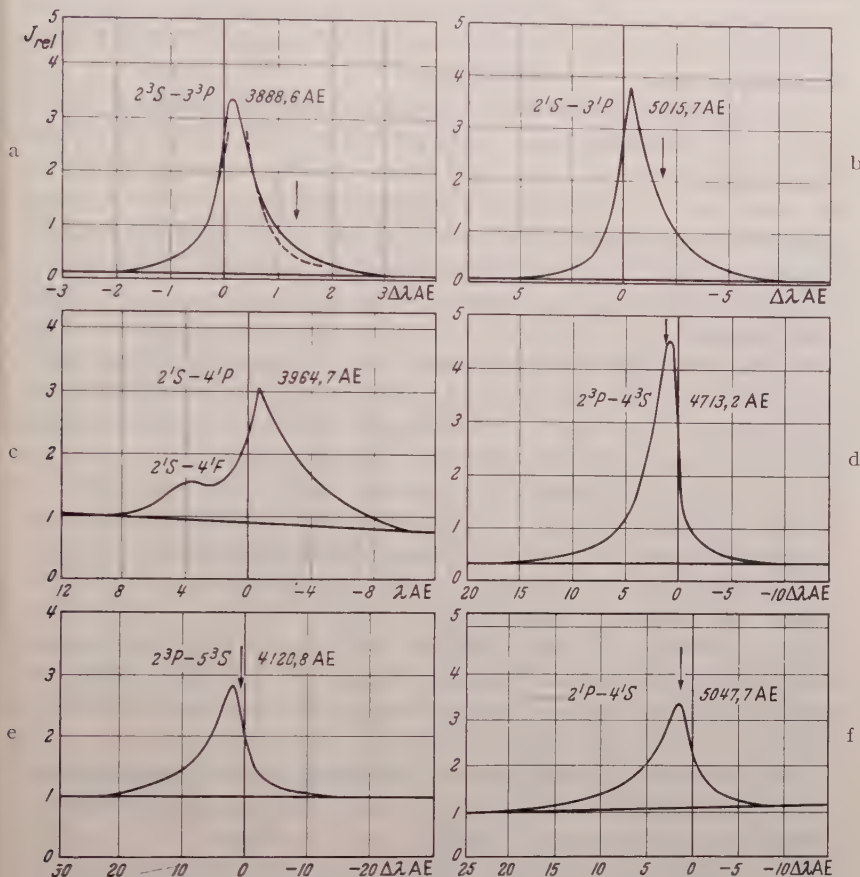


Fig. 9 a—f. Die experimentellen Linienprofile der He-Linien $\lambda\lambda$ 3889, 5016, 3965, 4713, 4121 und 5048 Å. Alle diese Linien sind hier mit der Stoßdämpfungstheorie verglichen. Hinsichtlich der Elektronen, deren Wirkung überwiegt, liegen die gesamten Linienprofile im Bereich der Gültigkeit der Stoßdämpfungstheorie. Hinsichtlich der Wirkung der Ionen läßt sich mit dem eingezeichneten Pfeil nach den üblichen Abschätzungen jeweils eine Grenze angeben. In Verschiebungsrichtung gesehen gilt jenseits des Pfeiles die statistische Theorie, auf der anderen Seite des Pfeiles die Stoßdämpfungstheorie. Für die Linie $\lambda = 3964,7$ fällt der Pfeil mit der Lage der unverschobenen Linie zusammen, d.h. der ganze kurzwellige Linienflügel wird von den Ionen nach der statistischen Theorie beeinflusst

wurde dabei in Abzug gebracht. Ebenso wurden die Elektronendichten nach der Stoßdämpfungstheorie aus den Halbwertsbreiten der übrigen Linien berechnet, die mit Ausnahme von $\lambda = 5016$ Å und $\lambda = 3965$ Å

* Berücksichtigt man die Ionen so, als ob auch sie an der Stoßdämpfung teilnähmen, so würden die Elektronendichten der Spalte 8 in Tabelle 1 um 25 % kleiner.

ebenfalls nicht aufspalten (Tabelle 1, Spalte 8)*. Sollte es unzulässig sein, so zu verfahren, müßte sich eine Abhängigkeit der berechneten Elektronendichte von der Lage der Grenze beider Verbreiterungstheorien ergeben. Eine solche Korrelation besteht jedoch nicht, was in Einklang steht mit unserer Annahme, daß die Wirkung der Ionen in erster Näherung vernachlässigt werden kann.

Auffällig und nicht durch Meßfehler zu erklären sind die Abweichungen der mit den Linien $\lambda = 5016 \text{ \AA}$ und $\lambda = 3965 \text{ \AA}$ berechneten Elektronendichten der Spalte 8 in Tabelle 1. Wir bemerken dazu, daß für keine der in Tabelle 1 verzeichneten Linien quantitative Stark-Effekt-Messungen bis zu Feldstärken vorliegen, die so groß wie die Stoßfeldstärken sind (Tabelle 1, Spalte 4). Die vorhandenen Messungen an $\lambda = 5016 \text{ \AA}$ und $\lambda = 3965 \text{ \AA}$ zeigen jedoch, daß Abweichungen vom streng quadratischen Stark-Effekt erfolgen. Die Umwandlung des quadratischen Stark-Effekts in den linearen beginnt bekanntlich etwa dann, wenn die Frequenzverstimmung der Linie durch das äußere Feld in die Größenordnung der Termdifferenz zwischen dem oberen Term der Linie und dem Störterm kommt (Tabelle 1, Spalte 6). Für $\lambda = 5016 \text{ \AA}$ und $\lambda = 3965 \text{ \AA}$ ist die Frequenzverstimmung bei der Stoßfeldstärke CF_{St}^2 (Tabelle 1, Spalte 5) aber um einen Faktor 7 bzw. 9 größer als die genannte Termdifferenz. Die Voraussetzung, daß Stoßdämpfung durch quadratischen Stark-Effekt vorliege, ist für diese Linien daher nicht mehr erfüllt. Im Rahmen der Stoßdämpfungstheorie ist also — wie es diese Theorie verlangt — für das Verhalten der Linie die Stoßfeldstärke und nicht die jeweils herrschende mittlere Feldstärke maßgeblich. Das wird nicht immer beachtet, worauf in anderem Zusammenhang bereits A. UNSÖLD hingewiesen hat (¹, S. 491).

Bemerkenswert ist, daß die mit $\lambda = 5016 \text{ \AA}$ und $\lambda = 3965 \text{ \AA}$ berechneten Elektronendichten von der absoluten Größe der Termdifferenz (Spalte 6) und nicht vom Verhältnis der Verstimmung CF_{St}^2 (Spalte 5) zur Termdifferenz abzuhängen scheinen. Ob diese Beziehung auch für die Linien $\lambda = 3889 \text{ \AA}$, $\lambda = 4713 \text{ \AA}$, $\lambda = 4121 \text{ \AA}$ und $\lambda = 5048 \text{ \AA}$ reell ist, läßt sich zur Zeit noch nicht sicher entscheiden.

Die Verschiebungen $\Delta\lambda_V$ wurden jeweils von der unverschobenen (Geißler-) Linie bis zur Mitte der Halbwertsbreite gemessen. Das nach den Gl. (7) und (8) für alle Linien gültige theoretische Verhältnis $\Delta\lambda_H/\Delta\lambda_V = 1,16$ konnte nicht bestätigt werden (Tabelle 1, Spalte 7)**. Die nach Gl. (8) aus der Verschiebung berechneten Elektronendichten

* Für diese Linien bestimmten wir eine mittlere Stark-Effekt-Konstante durch Mittelung der Stark-Effekt-Konstanten ihrer Komponenten.

** Die gemessenen Verhältnisse $\Delta\lambda_H/\Delta\lambda_V$ kommen für die Linien der scharfen Nebenserien, welche die Voraussetzung „quadratischer Stark-Effekt“ am besten erfüllen, dem theoretischen Wert am nächsten.

sind dementsprechend etwa um einen Faktor 2 kleiner als die in Tabelle 1, Spalte 8 angegeben, aus der Halbwertsbreite nach Gl. (7) berechneten Werte.

Eine probeweise Anwendung der Statistischen Theorie auf die Verschiebung führte mit Ausnahme von $\lambda = 3965 \text{ \AA}$ dagegen zu unplausibel hohen Elektronendichten ($> 10^{17} \text{ cm}^{-3}$). Ebenso war es nicht möglich, den „statistischen“ Flügel von $\lambda = 4713 \text{ \AA}$ mit Hilfe der statistischen Theorie für quadratischen Stark-Effekt wiederzugeben.

Schlußbemerkung

Elektronendichten, die etwa um einen Faktor 5 kleiner sind als die des untersuchten Plasmas, würden die Überprüfung der Stoßdämpfungstheorie sehr erleichtern, da dann auch die Ionen im Rahmen dieser Theorie wirken sollten. Es wären dann symmetrische Linienkonturen zu erwarten, die sich mit den theoretischen in ihrem ganzen Umfang vergleichen ließen, während es in der vorliegenden Arbeit nur gelang, die Übereinstimmung von theoretischem und experimentellem Profil für den kurzwelligen Flügel der Linie $\lambda = 3889 \text{ \AA}$ ($2^3S - 3^3P$) nachzuweisen und die Übereinstimmung der aus den Halbwertsbreiten der übrigen Linien ermittelten Elektronendichten zu zeigen.

Eine Verkleinerung der Elektronendichte hat aber bei gleichbleibender Temperatur und damit gleicher Anregung eine Verkleinerung der Gesamtteilchendichte zur Folge. Das macht es zunehmend schwierig, die Forderung nach thermischem Gleichgewicht zu erfüllen, da einmal die beim Durchlaufen einer freien Weglänge im elektrischen Felde zwischen den Elektroden aufgenommene oder abgegebene Energie nicht mehr klein gegen die thermische Energie (kT) ist, zum anderen die freien Weglängen der Teilchen in die Größenordnung des Entladungsrohrdurchmessers kommen (bei etwa 10^{15} Teilchen im cm^3).

Verfasser dankt dem Direktor des Kieler Instituts für Experimentalphysik, Herrn Professor Dr. W. LOCHTE-HOLTGREVEN, für die stete Förderung und Unterstützung dieser Arbeit, sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft für Überlassung der Spektrographen und des Photometers.

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität München

Über die Beobachtung von Weißschen Bereichen in polykristallinem Material durch die vergrößerte magneto-optische Kerrdrehung

Von

J. KRANZ und W. DRECHSEL

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 11. Januar 1958)

Auf eine polierte ferromagnetische Probe wird eine ZnS-Schicht bestimmter Dicke aufgedampft. Durch Vielfachreflexionen in der Schicht und durch Interferenzwirkungen wird die magneto-optische Kerrdrehung linear polarisierten, monochromatischen Lichtes bei meridionaler Magnetisierung der Probe so wesentlich vergrößert, daß die photographische Registrierung oder die visuelle Beobachtung von Weißschen Bereichen während der Magnetisierung der Probe ohne Schwierigkeit möglich wird.

Die Sichtbarmachung und Beobachtung von Weißschen Bereichen auf der Oberfläche eines ferromagnetischen Körpers mit Hilfe des magneto-optischen Kerr-Effektes bereitet im allgemeinen erhebliche Schwierigkeiten wegen der Kleinheit der Kerr-Drehung von nur wenigen Winkelminuten. Das entstehende Bild ist deswegen kontrastarm und sehr lichtschwach^{1,2}. In zwei vorausgegangenen Arbeiten^{3,4} aus diesem Institut wurde theoretisch und experimentell gezeigt, daß diese kleine Kerr-Drehung durch dielektrische Aufdampfschichten sehr vergrößert werden kann. Die damaligen Untersuchungen bezogen sich zunächst nur auf den Spezialfall senkrechter Inzidenz des linear polarisierten Lichtes auf die Probenoberfläche bei polarer Magnetisierung.

Inzwischen haben wir die Arbeiten fortgesetzt und den praktisch wichtigeren Fall des meridionalen Kerr-Effektes bei Beobachtung der Probe unter einem Winkel von etwa 55° behandelt.

Methode

Der Methode liegt folgende anschauliche Überlegung zugrunde. Auf die nach dem üblichen Verfahren mechanisch gut polierte, grob kristalline Probe P wird eine dielektrische, nichtabsorbierende Schicht S aufgedampft (Fig. 1). Auf die Grenzfläche Luft—Schicht falle linear

¹ WILLIAMS, H. J., F. G. FOSTER u. E. A. WOOD: Phys. Rev. **82**, 773 (1951).

² FOWLER jr., C. A., E. M. FRYER u. J. R. STEVENS: Phys. Rev. **104**, 645 (1956).

³ KRANZ, J.: Naturwiss. **43**, 370 (1956).

⁴ HEINRICH, W.: Sitzgsber. bayer. Akad. Wiss., Math.-naturwiss. Kl. **1956**, 133–153.

polarisiertes, monochromatisches Licht. Seine Amplitude sei \mathfrak{N}_0 , die Polarisationssebene sei senkrecht zur Einfallsebene orientiert. Ein Teil des Lichtes mit der Amplitude \mathfrak{N}_0 wird an dieser Grenzschicht gemäß den Fresnelschen Formeln reflektiert. Der andere Teil tritt in die Schicht ein und trifft mit der Amplitude $\mathfrak{N}_{0\alpha}$ auf die Probenoberfläche. Ist die Probe magnetisiert, so wird zu der in gewöhnlicher Weise an der Grenzfläche Schicht—Probe reflektierten Amplitude $\mathfrak{N}_{0\beta}$ eine neue Komponente, die Kerr-Komponente $\mathfrak{K}_{0\beta}$ hinzuaddiert. $\mathfrak{N}_{0\beta}$ ist parallel zur Einfallsebene des Lichtes polarisiert. Die Polarisationssebene der

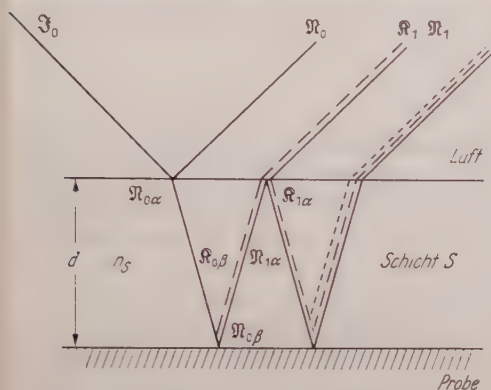
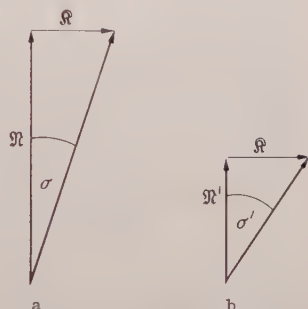


Fig. 1. Strahlengang an einer beschichteten Probe


 Fig. 2 a u. b. Vergrößerung der Kerr-Drehung σ

reflektierten Gesamtkomponente $\mathfrak{N}_{0\beta} + \mathfrak{K}_{0\beta}$ ist also gegen die der einfallenden Komponente gedreht. An der Grenzfläche Schicht—Luft wird ein Teil der Gesamtkomponente wieder auf die Probe zurückreflektiert. Dort wird durch Addition einer weiteren Kerr-Komponente die Polarisationssebene nochmals weitergedreht usw. Die Vergrößerung der magneto-optischen Kerr-Drehung resultiert also aus den Vielfachreflexionen in der Schicht, wobei bei jeder Reflexion an der Probenoberfläche eine weitere Drehung der Polarisationssebene stattfindet.

In Fig. 2a und 2b wird dargestellt, wie eine weitere Vergrößerung der magneto-optischen Kerr-Drehung erreicht werden kann (s. auch^{3,4}). Es sei \mathfrak{N} die Amplitude der von einer Probe in gewöhnlicher Weise reflektierten Normalschwingung. \mathfrak{K} sei die Amplitude der aus der Normalschwingung durch die Magnetisierung erzeugten Kerr-Schwingung. Ihr Vorzeichen ist von der Magnetisierungsrichtung abhängig. Nimmt man an, daß die Phasendifferenz zwischen \mathfrak{K} und \mathfrak{N} stets Null ist, so ergibt sich als Kerr-Drehung der Winkel σ (Fig. 2a). Erreicht man eine Verkleinerung von \mathfrak{N} auf \mathfrak{N}' , ohne dabei \mathfrak{K} zu schwächen, so wird σ zu σ' , d.h. die Kerr-Drehung vergrößert (Fig. 2b). Das wird erreicht, wenn die Amplituden der in gewöhnlicher Weise an den Grenzflächen

Luft—Schicht und Schicht—Probe reflektierten Normalkomponenten durch die Interferenzwirkung der Schicht zu einem Minimum interferieren.

Diese Forderung bedeutet für die Schichtdicke d und für den Brechungsindex n der Schicht nach Gl. (1) (s. unten):

1. Die Schichtdicke d muß so gewählt werden, daß der Phasenunterschied zwischen den Amplituden von \mathfrak{R}_0 und \mathfrak{R}_1 ein ungerades Vielfaches von π beträgt (Phasenbedingung).

2. Der Brechungsindex n der Schicht muß so gewählt werden, daß die Reflexionskoeffizienten an den beiden Grenzschichten möglichst gleich werden (Amplitudenbedingung).

Theorie

Diese zunächst qualitativen Überlegungen zur Methode sind in der zitierten Arbeit von W. HEINRICH a. a. O. in Strenge theoretisch durchgerechnet für den Fall der senkrechten Inzidenz bei polarer Magnetisierung. Im Falle der schrägen Inzidenz ergibt sich für das Verhältnis von *normal* reflektierter und ankommender Intensität

$$\frac{N}{J_0} = 1 - \frac{(1 - r_1)(1 - r_2)}{1 + r_1 r_2 + 2 \sqrt{r_1 \cdot r_2} \cdot \cos \psi_0}. \quad (1)$$

Im Falle der meridionalen Magnetisierung, schräger Inzidenz und Orientierung der Polarisationssebene senkrecht zur Einfallsebene ergibt sich für das Verhältnis der Intensitäten der reflektierten *Kerr*-Schwingung und der ankommenden Schwingung nach einer allgemeineren Rechnung

$$\frac{K}{J_0} = \frac{f_e \cdot (1 - r_1') (1 - r_1)}{1 - 2A + 4B - 2C + D}. \quad (2)$$

Es bedeuten in Gl. (1) und (2): Gestrichene Größen: Polarisationssebene parallel zur Einfallsebene orientiert. Ungestrichene Größen: Polarisationssebene senkrecht zur Einfallsebene orientiert.

J_0 = einfallende Intensität; n = Brechungsindex der Schicht; d = Schichtdicke; r_2 = Reflexionskoeffizient an der Grenze Probe—Schicht; r_1 = Reflexionskoeffizient an der Grenze Schicht—Luft; S/Fe = Phasensprung an der Grenze Probe—Schicht; χ = Einfallswinkel an der Grenze Probe—Schicht; φ = Einfallswinkel an der Grenze Schicht—Luft; $\psi_0 = \pi - \frac{2nd \cdot 2\pi \cdot \cos \chi}{\lambda} + S/Fe$; $\psi = -\frac{2nd \cdot 2\pi \cdot \cos \chi}{\lambda} + S/Fe$; $\psi' = -\pi - \frac{2nd \cdot 2\pi \cdot \cos \chi}{\lambda} + S/Fe'$; $R = (r_1 r_2)^{\frac{1}{2}}$; $A = R' \cdot \cos \psi' + R \cdot \cos \psi$; $B = R' R \cos \psi' \cdot \cos \psi$; $C = R' R^2 \cos \psi' + R R'^2 \cos \psi$; $D = R'^2 R^2 + R'^2 + R^2$.

Es läßt sich zeigen, daß durch entsprechende Wahl von n und d das Verhältnis von K/J_0 in Gl. (2) praktisch ein Maximum wird, während durch das gleiche n und d das Verhältnis N/J_0 in Gl. (1) ein Minimum

ergibt. Diese ausgezeichneten Werte von n und d sind aber identisch mit den Forderungen an die Schicht, die bereits weiter oben aus den qualitativen Überlegungen abgeleitet wurden.

Herstellung der Schichten

Die Forderungen an die Interferenzschicht lassen sich experimentell in folgender Weise realisieren. In einer Bedampfungsanlage (BALZERS Typ BA 500) wird mit linear polarisiertem, monochromatischem Licht mit senkrecht zur Einfallsebene orientierter Polarisationsebene während der Bedampfung der Probe die Intensität des reflektierten Lichtes unter dem Winkel photometrisch gemessen, unter dem später die Probe beobachtet werden soll. Wenn die reflektierte Intensität durch ein Minimum geht, wird die Bedampfung unterbrochen. Damit ist die Phasenbedingung erfüllt. Es hat sich theoretisch und experimentell erwiesen, daß auch die Amplitudenbedingung mit guter Genauigkeit erfüllt wird von einer ZnS-Schicht ($n = 2,37$) auf siliziertem Eisen (3% Si) bei einem Beobachtungswinkel von etwa 55° .

Beobachtung von Weißschen Bereichen

Die Beobachtung der Magnetisierungsvorgänge geschieht in der in Fig. 3 skizzierten Anordnung.

Dabei bedeuten: Q Lichtquelle (Hg-Höchstdrucklampe Osram HBO 107); L Achromat ($f = 4$ cm, Öffnungsverhältnis 1:2,5), in dessen Brennebene sich Q befindet; F Farbfilter für die Hg-Linie 5461 Å; A Polarisator (Polarisationsfolie Käsemann Ks-MIK); P beschichtete Probe, eingespannt zwischen die Polschuhe eines Elektromagneten; B Analysator (Polarisationsfolie Käsemann Ks-MIK); M Mikroskop mit großem Arbeitsabstand (Arbeitsmikroskop Zeiss-Opton; Zum Photographieren wird eine Mikroskopaufsetzkamera verwendet).

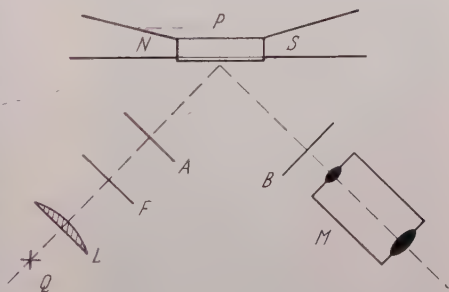


Fig. 3. Versuchsanordnung

Der Polarisator wird zunächst so eingestellt, daß die Polarisationsebene senkrecht zur Einfallsebene des Lichtes auf die Probe P steht. Der Analysator wird auf maximale Dunkelheit gedreht. Nach einem Vorschlag von W. HEINRICH⁴ wird sodann der Polarisator um etwa 30 Winkelminuten aus seiner Anfangsstellung herausgedreht. Danach wird die Probe durch Erregung des Elektromagneten magnetisiert. Dann sind bereits mit nicht adaptiertem Auge auf den Kristalliten

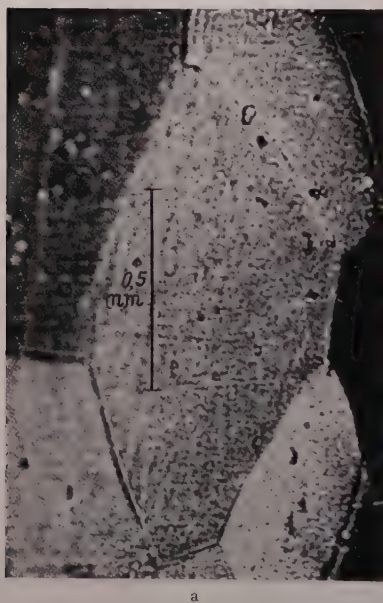
Weißsche Bereiche zu sehen, die je nach der zufälligen, durch das Polieren der Probe erhaltenen Lage der Oberfläche relativ zu den kristallographischen Achsen des Kristalliten die verschiedensten Formen haben. Die Änderung dieser Bereiche beim Durchlaufen der Hysterese läßt sich ohne Schwierigkeit verfolgen.



Fig. 4. Teilweise beschichtete Probe

Die Fig. 4 bis 6 sind photographische Aufnahmen, die mit folgenden Daten hergestellt wurden: Negativmaterial: Agfa Isopan 17/10 DIN (28° Sch); Belichtungszeit: 2 min; normaler Feinkornentwickler.

Die Fig. 4 soll den Unterschied zwischen dem vergrößerten Kerr-Effekt und dem normalen Kerr-Effekt zeigen. Die effektvergrößernde Schicht ist nur in dem ovalen Gebiet aufgedampft, während außen keine Schicht ist. Im unbeschichteten Teil sind praktisch überhaupt keine Bereichsstrukturen zu erkennen.



a



b

Fig. 5a–f. Bereiche auf einem Kristallit bei wechselnder Magnetisierung. a 23500 Gauß, b 10000 Gauß

Die Fig. 5 und 6 zeigen das Aussehen von Bereichen auf verschiedenen Kristalliten der Probe bei verschiedenen Magnetisierungen.



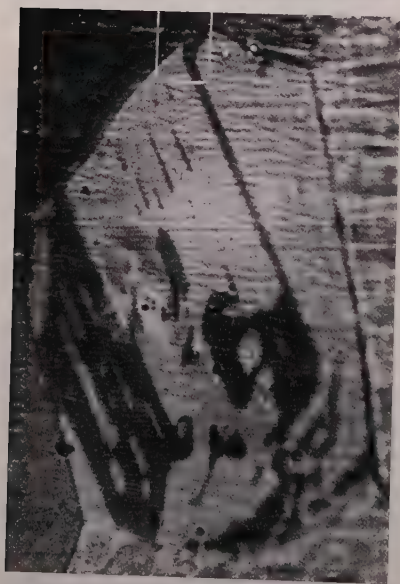
Fig. 5 c—f. c 6400 Gauß, d —8000 Gauß, e —12900 Gauß, f —15 500 Gauß



a



b



c



d

Fig. 6 a—f. Bereiche auf einem Kristallit bei wechselnder Magnetisierung. a — 10910 Gauß, b — 6800 Gauß, c — 2540 Gauß, d 1330 Gauß

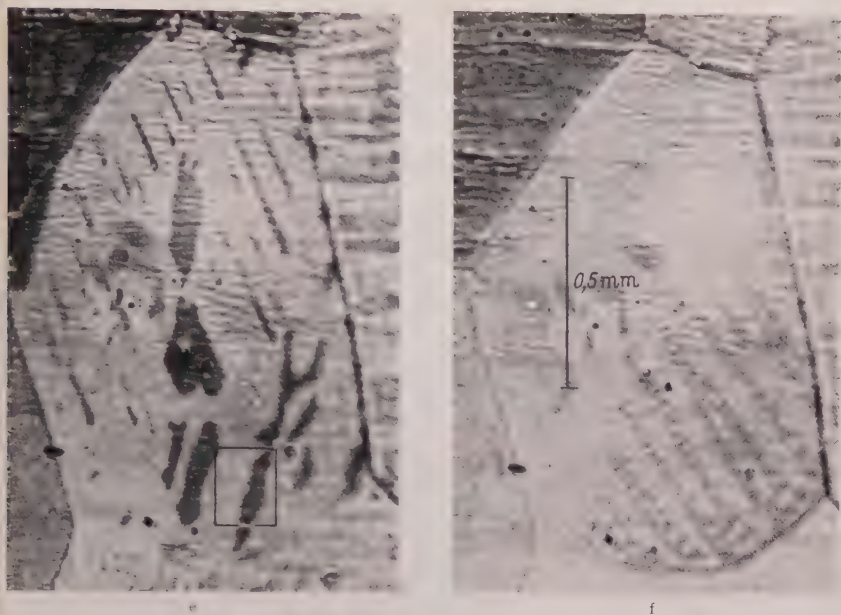


Fig. 6 e u. f. e 7640 Gauß, f 15620 Gauß

Die Richtung des äußeren Feldes läuft von links nach rechts bzw. umgekehrt. Ohne zunächst in dieser Arbeit auf magnetische Einzelheiten, wie z.B. das „Hängenbleiben“ einer Wand an einem zufälligen Kratzer in der Oberfläche (Fig. 5 d—f im Kreis) oder das Zurückklappen von bereits ausgebildeten Bereichen näher einzugehen (Fig. 6 c und e im Viereck), sei darauf hingewiesen, daß nur auf einigen Kristalliten Bereichsstrukturen zu erkennen sind. Das hat seinen Grund darin, daß nur der meridionale Kerr-Effekt beobachtet wird, d.h. die magnetischen Vektoren in den Bereichen müssen parallel zur Einfallsebene *und* zur Oberfläche liegen oder doch zumindest eine merkliche Komponente in dieser Richtung besitzen. Diese Bedingung wird natürlich bei einem beliebig anpolierten polykristallinen Material nur bei wenigen Kristalliten zufällig erfüllt.

Es ist beabsichtigt, diese Methode, die zum Unterschied von der Pulverstreifenmethode nach BITTER vollkommen trägheitslos arbeitet, zu verwenden bei der Untersuchung von Magnetisierungsvorgängen in polykristallinem Material. Entsprechende Untersuchungen sind im Gange.

Wir danken Herrn Professor GERLACH für sein Interesse an dieser Arbeit und für die Bereitstellung von Institutsmitteln. Aufdampfapparatur und einige Hilfsgeräte hat dankenswerterweise die Deutsche Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt.

From the Departments of Physics at the University of Illinois, Urbana, Illinois,
and Princeton University, Princeton, New Jersey

Note on Relativistic Coulomb Wave Functions

By

J.D. JACKSON*, S.B. TREIMAN** and H.W. WYLD jr.*

(Eingegangen am 24. Januar 1958)

Some results on the wave functions of a Dirac particle in a point charge Coulomb field are presented. Angular momentum and parity eigenfunctions are tabulated and used to construct solutions representing asymptotically a plane wave plus incoming or outgoing spherical waves. The solutions for $r \rightarrow 0$ are exhibited in a form closely similar to the corresponding free particle spinors and are used to construct generalizations of the Casimir projection operators for positive or negative energy particles. The various wave functions presented are useful in calculations such as nuclear beta decay in which it is necessary to take into account final (or initial) state Coulomb interactions. Because of the similarity of the wave functions to those of a free particle, calculations including rigorously all Coulomb corrections for such processes as allowed beta decay can be performed with little more effort than is involved in a calculation using only plane waves.

I. Introduction

In various problems in nuclear physics and elementary particles physics, for example nuclear beta decay, it is necessary to take into account Coulomb interactions between particles in the final state of a reaction. This is accomplished by replacing the plane wave representing the final particles by an "ingoing wave" solution—a solution of the wave equation including Coulomb interaction which reduces asymptotically at infinity to a plane wave plus an ingoing spherical wave¹. To take into account Coulomb effects in the initial state, the plane wave is replaced by the corresponding "outgoing wave" solution. As an aid in performing such calculations we present the appropriate ingoing and outgoing wave solutions for positive and negatively charged Dirac particles in a point charge Coulomb field.

In certain applications, such as allowed beta decay, only the value of these wave functions at the origin enters the calculations. It is possible to express the ingoing and outgoing wave solutions evaluated at the origin in a form very much like a solution of the Dirac equation

* At the University of Illinois, Urbana, Illinois.

** At Princeton University, Princeton, New Jersey.

¹ See for example MOTT, N. F., and H. S. W. MASSEY: *Theory of Atomic Collisions*, 2. edit., p. 356; (Oxford University Press), or BREIT, G., and H. A. BETHE: *Phys. Rev.* **93**, 888 (1954) and references cited therein.

without Coulomb interaction. From these wave functions a projection operator to be used in calculating sums over spin states can be obtained which is also very close in form to the Casimir projection operator neglecting Coulomb interactions. These results enable one to perform calculations for allowed beta transitions including rigorously the (point nucleus) Coulomb interactions with little more labor than is involved in a calculation using plane waves.

II. Ingoing Wave Solutions for a Dirac Particle in an Attractive Coulomb Field

We wish to find a solution of the Dirac equation:

$$\left[\frac{1}{i} \vec{\alpha} \cdot \vec{V} + \beta m - \frac{Ze^2}{r} \right] \psi = E \psi = \sqrt{p^2 + m^2} \psi \quad (1)$$

describing a relativistic spin $\frac{1}{2}$ particle (an "electron") in an attractive point charge Coulomb field, which solution reduces asymptotically to a plane wave plus an ingoing spherical wave. We use units such that $\hbar = c = 1$ and the usual representation of the Dirac matrices:

$$\vec{\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{\sigma} \\ \vec{\sigma} & 0 \end{pmatrix}, \quad \beta = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix}, \quad (2)$$

where $\vec{\sigma}$ is the 2×2 Pauli spin matrix, and I is the 2×2 unit matrix.

The desired solution can be obtained by a suitable superposition of solutions of the Dirac equation with definite angular momentum and parity. These have been tabulated by ROSE². For convenience we reproduce the formulas here with some changes in normalization and notation. For a given total angular momentum j and z -component m , there are two solutions of Eq. (1) corresponding to the two possible parities $p = (-1)^{j-\frac{1}{2}}$. For positive energies these solutions have the form:

$$\psi(j, m, (-1)^{j \pm \frac{1}{2}}) = \begin{pmatrix} f_k(p r) \Phi(j, m, j \pm \frac{1}{2}) \\ -i g_k(p r) \Phi(j, m, j \mp \frac{1}{2}) \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Here the $\Phi(j, m, l)$ are the ordinary two component spinor angular momentum functions obtained from adding orbital angular momentum l to spin $\frac{1}{2}$ to obtain total angular momentum j and z -component m . For a given j , the radial functions $f_k(p r)$ and $g_k(p r)$ depend on the quantum number k which assumes the values

$$k = \begin{cases} j + \frac{1}{2} & \text{for parity } (-1)^{j+\frac{1}{2}} \\ -(j + \frac{1}{2}) & \text{for parity } (-1)^{j-\frac{1}{2}} \end{cases}. \quad (4)$$

² ROSE, M.E.: Phys. Rev. **51**, 484 (1937).

$f_k(p r)$ and $g_k(p r)$ are given by the formulas

$$\left. \begin{aligned} f_k(p r) &= \frac{e^{\frac{\pi}{2} \xi}}{\Gamma(2\gamma+1)} |\Gamma(\gamma+i\xi)| (2p r)^{\gamma-1} \\ &\quad \times \{e^{-ipr+i\eta} (\gamma+i\xi) F(\gamma+1+i\xi, 2\gamma+1; 2ip r) + \text{c.c.}\}, \\ g_k(p r) &= \frac{ip}{E+m} \frac{e^{\frac{\pi}{2} \xi}}{\Gamma(2\gamma+1)} |\Gamma(\gamma+i\xi)| (2p r)^{\gamma-1} \\ &\quad \times \{e^{-ipr+i\eta} (\gamma+i\xi) F(\gamma+1+i\xi, 2\gamma+1, 2ip r) - \text{c.c.}\}, \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

where

$$\left. \begin{aligned} \xi &= Z e^2 E/p, \\ \gamma &= \sqrt{k^2 - (Z e^2)^2}, \\ e^{2i\eta} &= -\left(k - i \frac{\xi m}{E}\right) / (\gamma + i\xi), \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

and F is the confluent hypergeometric function

$$F(a, b; x) = \frac{\Gamma(b)}{\Gamma(a)} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\Gamma(a+n)}{\Gamma(b+n)} \frac{x^n}{n!}.$$

Both $f_k(p r)$ and $g_k(p r)$ are real functions. They differ in normalization from those given by ROSE in that his radial functions are multiplied by an additional factor $\sqrt{p(E+m)/\pi}$. Asymptotically

$$\left. \begin{aligned} f_k(p r) &\xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{1}{p r} \sin(p r + \delta), \\ g_k(p r) &\xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{p}{E+m} \frac{1}{p r} \cos(p r + \delta), \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

where

$$\delta(k) = \xi \log(2p r) - a r g \Gamma(\gamma+i\xi) + \eta - (\gamma-1) \frac{\pi}{2}. \quad (8)$$

To construct the desired ingoing wave solution we superpose the angular momentum wave functions (3):

$$\psi^{\pm} = \sum_{j, m} [A_{jm}^{\pm} \psi(j, m, (-1)^{j+\frac{1}{2}}) + B_{jm}^{\pm} \psi(j, m, (-1)^{j-\frac{1}{2}})] \quad (9)$$

to give a new wave function which asymptotically has the form³

$$\psi^{\pm} \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \left(\frac{\chi}{\vec{\sigma} \cdot \vec{p}} \chi \right) e^{i\vec{p} \cdot \vec{r}} + \frac{e^{-ipr}}{r} f \quad (10)$$

where the superscript \pm corresponds to $\chi = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ or $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$, respectively. The plane wave is normalized to unity. To find A_{jm}^{\pm} and B_{jm}^{\pm} one uses

³ For convenience we imagine the Coulomb potential cut off at some very large radius a whose exact value is unimportant in any physical problem. See GORDON, W.: Z. Physik **48**, 180 (1928).

the well known expansion of $\exp(i\vec{p} \cdot \vec{r})$ in spherical harmonics and the asymptotic forms (7) to equate asymptotically the outgoing wave part of Eq. (9) to the outgoing wave part of Eq. (10) for $r \gg a$. In this way one finds

$$\left. \begin{aligned} A_{jm}^+ &= 4\pi \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \sqrt{\frac{j+1-m}{2j+2}} e^{-i\delta(j+\frac{1}{2})} Y_{j+\frac{1}{2}}^{*m-\frac{1}{2}}(\vec{p}) \\ B_{jm}^+ &= 4\pi \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \sqrt{\frac{j+m}{2j}} e^{-i\delta(-j-\frac{1}{2})} Y_{j-\frac{1}{2}}^{*m-\frac{1}{2}}(\vec{p}) \\ A_{jm}^- &= -4\pi \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \sqrt{\frac{j+1+m}{2j+2}} e^{-i\delta(j+\frac{1}{2})} Y_{j+\frac{1}{2}}^{*m+\frac{1}{2}}(\vec{p}) \\ B_{jm}^- &= 4\pi \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \sqrt{\frac{j-m}{2j}} e^{-i\delta(-j-\frac{1}{2})} Y_{j-\frac{1}{2}}^{*m+\frac{1}{2}}(\vec{p}) \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

The phase shifts $\delta(k)$ in Eq. (11) and subsequent formulas are to be evaluated at $r=a$. Eqs. (9) and (11) give the ingoing wave solution appropriate for the final state wave function of a positive energy Dirac particle interacting with an attractive Coulomb field⁴.

III. Modifications Necessary for Outgoing Wave Solutions and for Positrons

The discussion given in the previous section was for incoming wave solutions with an attractive Coulomb potential (we shall call such solutions "electron" wave functions). If an outgoing wave solution is desired, the second term in Eq. (10) must be suitably modified and the incoming parts of Eqs. (9) and (10) must be equated to determine the coefficients A_{jm}^- and B_{jm}^- . When this is done it is found that the coefficients have the same form as in Eq. (11) with the replacements:

$$\left. \begin{aligned} e^{-i\delta} &\rightarrow (-1)^{j+\frac{1}{2}} e^{i\delta} & \text{for } A_{jm}^\pm \\ e^{-i\delta} &\rightarrow (-1)^{j-\frac{1}{2}} e^{i\delta} & \text{for } B_{jm}^\pm \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

With the modification according to Eq. (12), Eqs. (11) and (9) now give the outgoing wave solution which takes into account the Coulomb interaction in the initial state of a positive energy electron incident on a point nucleus of charge Ze .

For positrons involved in a reaction such as nuclear beta decay the incoming or outgoing wave solutions can be obtained from those for electrons by the substitution $Z \rightarrow -Z$. In most cases, however, the

⁴ It should be emphasized that the results of this section are not new in substance, but are summarized for reference purposes and for the subsequent development in Sec. IV. Previous workers have derived equivalent formulas in other contexts. See, for example, ROSE, M. E., L. C. BIEDENHARN and G. B. ARFKEN: Phys. Rev. **85**, 5 (1952), Secs. II and III.

formalism is such that instead of the positron wave function one needs the equivalent negative energy electron wave function. This negative energy solution can be obtained from the positive energy solution for a repulsive Coulomb interaction by charge conjugation:

$$\psi_{-E}(Z) = i\alpha_2\beta\psi_{+E}^*(-Z). \quad (13)$$

For a positron of energy E and momentum \vec{p} , the negative energy solution corresponding to incoming positron waves (given by Eqs. (9) and (11) with $Z \rightarrow -Z$) is found from Eq. (13) to be

$$i\alpha_2\beta\psi^\pm(-Z)^* = \pm \sum_{jm} e^{-i\gamma\pi} [A_{jm}^\mp(Z) \psi^1(j, m, (-1)^{j+\frac{1}{2}}) + B_{jm}^\mp(Z) \psi^1(j, m, (-1)^{j-\frac{1}{2}})] \quad (14)$$

where

$$\psi^1(j, m, (-1)^{j\pm\frac{1}{2}}) = \begin{pmatrix} i g_k(-Z) \Phi(j, m, j \mp \frac{1}{2}) \\ f_k(-Z) \Phi(j, m, j \pm \frac{1}{2}) \end{pmatrix}. \quad (15)$$

Note that the coefficients A_{jm}^\pm and B_{jm}^\pm in Eq. (14) are those given by Eq. (11) *without* change in sign of Z . Eq. (14) can be shown to represent a negative energy electron in an attractive Coulomb field with the asymptotic form of a plane wave of momentum $-\vec{p}$, ingoing spherical waves*, and spin $\mp \frac{1}{2}$, as is appropriate for the charge conjugate of an incoming wave solution representing a positron of momentum \vec{p} in a repulsive Coulomb field, with spin $\pm \frac{1}{2}$.

For outgoing wave positron solutions the wave function analogous to Eq. (14) can be readily obtained by arguments such as led to the modifications of Eq. (12).

IV. Wave Functions at $r=0$ and Projection Operators

In certain calculations, for example allowed beta decay, one needs only the wave function (9) evaluated at $r=0$. In such cases it is possible to write the exact wave function in simple form. Because of the factors $(2pr)^{\gamma-1}$ in Eq. (5) only the $j=\frac{1}{2}$ part of ψ in Eq. (9) survives at $r=0$. Using Eqs. (9) and (11) and substituting explicit formulas for the spherical harmonics and for $f_k(pr)$ and $g_k(pr)$ near $r=0$ from Eq. (5), one finds

$$\psi(r \rightarrow 0) = N \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \left(1 + \frac{iZe^2}{1+\gamma} \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{r}}{r} \right) \begin{pmatrix} \chi \\ M \frac{\vec{\sigma} \cdot \vec{p}}{E+m} \chi \end{pmatrix}. \quad (16)$$

* Under charge conjugation, $\exp(-i\vec{p} \cdot \vec{r} - iEt) \rightarrow \exp(i\vec{p} \cdot \vec{r} + iEt)$. Both forms represent ingoing waves.

Here

$$M = \frac{E + m}{E + \gamma m} \left(1 + i \frac{Z e^2 m}{p} \right), \quad \gamma = \sqrt{1 - (Z e^2)^2}, \quad (17)$$

and

$$N = e^{-i \delta(-1)} f_{-1}(p r) |_{r \rightarrow 0}. \quad (18)$$

Ordinarily N enters only as the absolute square. We find

$$|N|^2 = \frac{E + \gamma m}{E + m} F(Z, E), \quad (19)$$

where $F(Z, E)$ is the Fermi function⁵, given by

$$F(Z, E) = \frac{2(1 + \gamma)}{[\Gamma(2\gamma + 1)]^2} (2pR)^{2\gamma-2} e^{\pi\xi} |\Gamma(\gamma + i\xi)|^2. \quad (20)$$

R is some small radius, usually the nuclear radius. $F(0, E) = 1$.

In general the angle dependent of the wave function [the part proportional to $(\vec{r} \cdot \vec{r})$] will not contribute to the same transition as the isotropic part. In beta decay the isotropic part is involved in a transition with no change in parity (and $\Delta J = 0, \pm 1$), while the angle dependent part contributes to a transition in which parity changes. Consequently for allowed beta decay and similar processes we drop the angle dependent term and write

$$\psi(r \rightarrow 0) = N \sqrt{\frac{E + m}{2E}} \begin{pmatrix} \chi \\ M \frac{\vec{\sigma} \cdot \vec{p}}{E + m} \chi \end{pmatrix}. \quad (21)$$

Aside from the presence of the constants M and N , Eq. (21) is identical in form with a *free particle* Dirac spinor evaluated at $r=0$. This close correspondence between the exact Coulomb solution and the free particle wave function at $r=0$ means that calculations of such reactions as allowed beta decay with full Coulomb corrections can be accomplished with little more effort than is necessary for the calculation neglecting Coulomb effects completely.

To obtain the form equivalent to Eq. (21) but representing an outgoing wave solution instead of incoming waves it is only necessary to complex conjugate M and N .

For many purposes one wishes to sum over the two spin states of the Dirac particle. In such circumstances a useful quantity is the positive energy projection operator defined by

$$P_E = \sum_{\text{spins}} \psi \psi^\dagger. \quad (22)$$

⁵ FERMI, E.: Z. Physik **88**, 161 (1934).

Explicit calculation of P from Eq. (21) yields the projection operator for positive energy electrons in an attractive Coulomb field (incoming waves at infinity):

$$P_E = \frac{1}{2} F(Z, E) \left[1 + \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p} + \gamma m \beta}{E} - i \frac{Z e^2 m}{p} \beta \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p}}{E} \right], \quad (23)$$

which is a simple generalization of the usual Casimir projection operator neglecting Coulomb effects. For outgoing waves at infinity, the only modification is a change in sign of the last term.

To handle spin sums for positrons one needs the corresponding negative energy projection operator. First we charge conjugate Eq. (21) according to Eq. (13) to obtain

$$\psi_{-E}(Z) = i N^*(-Z) \sqrt{\frac{E+m}{2E}} \begin{pmatrix} M^*(-Z) \frac{\vec{\sigma} \cdot \vec{p}}{E+m} \sigma_2 \chi \\ \sigma_2 \chi \end{pmatrix}, \quad (24)$$

where σ_2 is the Pauli matrix $\sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}$. The projection operator corresponding to (24) and representing positive energy positrons in a repulsive Coulomb field (incoming waves at infinity) is

$$P_{-E} = \frac{1}{2} F(-Z, E) \left[1 + \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p} - \gamma m \beta}{E} + i \frac{Z e^2 m}{p} \beta \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p}}{E} \right]. \quad (25)$$

We note that E , \vec{p} , and χ in Eqs. (24) and (25) are the energy, momentum, and spin function of the real positron corresponding to the negative energy solution (24). Again the requirement of outgoing waves at infinity demands a change in sign of the last term in Eq. (25).

It is of some interest to compare the exact results of Eqs. (16) and (23) with those obtained from the approximate Furry-Sommerfeld-Maue wave functions⁶⁻⁹. The approximate wave function corresponding to Eq. (16) is

$$\psi_{FSM}(r \rightarrow 0) = N' \left(1 + \frac{i Z e^2}{2} \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{r}}{r} + i \frac{Z e^2}{2p} \vec{\alpha} \cdot \vec{p} \right) u, \quad (26)$$

where u is a free particle spinor, and $|N'|^2$ is essentially the non-relativistic Fermi function:

$$|N'|^2 = \pi \xi \frac{e^{\pi \xi}}{\sinh \pi \xi} = F_{NR}(Z, E). \quad (27)$$

⁶ FURRY, W.H.: Phys. Rev. **46**, 391 (1934).

⁷ SOMMERFELD, A., and A.W. MAUE: Ann. d. Physik **22**, 629 (1935).

⁸ BETHE, H.A., and L.C. MAXIMON: Phys. Rev. **93**, 768 (1954).

⁹ See also CUTKOSKY, R.E.: Phys. Rev. **95**, 1222 (1954).

The projection operator derived from the angle independent part of Eq. (26) is:

$$P_{FSM} = \frac{1}{2} F_{NR}(Z, E) \left[1 + \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p} + m\beta}{E} - i \frac{Ze^2 m}{p} \beta \frac{\vec{\alpha} \cdot \vec{p}}{E} \right], \quad (28)$$

where a term of order $(Ze^2)^2$ inside the bracket has been dropped. The exact result (23) differs by the presence of $\gamma m\beta$ instead of $m\beta$ and the relativistic Fermi function instead of the non-relativistic one. The Furry-Sommerfeld-Maue wave functions (for finite r) have the advantage of being in essentially closed form, whereas the exact solution must be written as an expansion of various angular momentum states, Eq. (9).

V. Summary and Conclusions

This paper presents some results on relativistic Coulomb wave functions which the authors found useful in calculations of allowed beta decay¹⁰. The angular momentum and parity eigenfunctions of a Dirac particle in a point Coulomb field are tabulated and used to construct the appropriate linear combinations which describe asymptotically a plane wave plus incoming (or outgoing) spherical waves. Solutions for both negatively and positively charged particles (or the equivalent positive and negative energy solutions) are presented. The incoming (or outgoing) wave solutions are examined near the origin and exhibited in a form closely similar to the corresponding free particle spinors. These wave functions are particularly useful in calculating such processes as allowed beta decay processes where the spin of the electron or positron is measured. In such cases χ in Eq. (21) [or Eq. (24)] is to be interpreted as the spin function of the electron (or positron) in its rest system. For reactions in which the spin is not observed, projection operators that are simple generalizations of the ordinary Casimir operator are derived from the exact functions at $r=0$.

It is possible to generalize the wave functions (16) and the projection operators to apply to first, and perhaps higher, forbidden transitions in beta decay. But it is clear that for discussion of such problems as the general n^{th} order beta transition techniques based directly on the angular momentum eigenfunctions Eq. (3) and vector addition methods would be more appropriate¹¹.

¹⁰ JACKSON, J. D., S. B. TREIMAN and H. W. WYLD: Nuclear Phys. **4**, 206 (1957).

¹¹ In this connection, see the formal discussion of KOTANI, T.: Progr. Theor. Phys. **14**, 379 (1955).

Aus der Comisión Nacional de la Energía Atómica, Buenos Aires (Argentinien)

Ausbeute von $(d, 2n)$ -Reaktionen im Kontinuumbereich

Von

O. HITTMAIR

(Eingegangen am 20. September 1957)

Die Energiewerte der anfallenden Deuteronen einer $(d, 2n)$ -Reaktion liegen für mittlere und schwere Kerne im Kontinuumbereich. Die Wechselwirkung dieser Deuteronen mit dem Anfangskern kann einerseits in Form von Zwischenkernbildung durch Absorption des Deuterons oder (d, n) -Stripping erfolgen, wonach dann zwei bzw. ein Neutron verdampft werden, oder andererseits in direkter Form durch eine Oberflächen- (p, n) -Reaktion, in der das Proton des Deuterons sich mit einem Neutron des Anfangskerns austauscht. Die Wirkungsquerschnitte dieser Reaktionsformen werden berechnet. Die Erweiterung auf $(d, 2p)$ -Reaktionen wird besprochen. Ein Vergleich mit dem Experiment würde erstens Aufschluß über das Vorwiegen des einen oder anderen Reaktionsmechanismus liefern und zweitens Aussagen machen über die Niveaudichten der betreffenden Kerne bzw. über die Gültigkeit des Verdampfungsmodells.

1. Einleitung

Der Energiebereich der beschleunigten Deuteronen, die zu $(d, 2n)$ -Reaktionen Anlaß geben, ist nach oben hin durch die Zahl der emittierten Neutronen, nach unten durch die Energieschwelle der Reaktion begrenzt, die stets mehrere MeV beträgt. Für mittlere und schwere Kerne führt eine Wechselwirkung mit diesen Deuteronen in den Kontinuumbereich der Zwischenkernbildung, falls es zur Bildung eines Zwischenkerns kommt. Diese kann durch Absorption des ganzen Deuterons oder durch Absorption des Protons allein, durch Stripping, erfolgen. Beide Vorgänge sind als Einleitung einer $(d, 2n)$ -Reaktion möglich. Die Wechselwirkung des Deuterons mit dem Kern kann aber auch durch direkten (p, n) -Austausch an der Oberfläche zu einer $(d, 2n)$ -Reaktion führen. Direkte Wechselwirkung im Kerninneren ist für $(d, 2n)$ -Reaktionen vernachlässigbar. Der Energiebereich der Deuteronen wird nämlich dadurch begrenzt, daß der Endkern der Reaktion nicht mit so viel Anregungsenergie zurückbleiben darf, daß er noch ein weiteres Teilchen emittieren könnte. Dadurch käme er natürlich für die $(d, 2n)$ -Ausbeute nicht mehr in Frage. Im allgemeinen wird aus diesem Grunde bei Energien von ungefähr 30 MeV schon ein starkes Absinken des $(d, 2n)$ -Wirkungsquerschnittes zu beobachten sein.

Es sind also folgende drei Reaktionsmöglichkeiten zu beachten:

a) Zwischenkernbildung durch Absorption des ganzen Deuterons und nachfolgende Verdampfung zweier Neutronen (Wirkungsquerschnitt σ_I).

b) Zwischenkernbildung durch (d, n) -Stripping und Zerfall des Zwischenkerns durch Verdampfen eines Neutrons (Wirkungsquerschnitt σ_{II}).

c) Direkter (p, n) -Austausch an der Oberfläche des Anfangskerns und Auslaufen des Neutrons aus dem Deuteron und des ausgetauschten (Wirkungsquerschnitt σ_{III}).

Diese drei Reaktionsmöglichkeiten sollten im Prinzip additiv den Gesamtwirkungsquerschnitt ausmachen. Es kann jedoch sein, daß infolge von Deuteronpolarisation oder durch die besonderen Eigenschaften des Niveaunkontinuums für den betreffenden Kern und die betreffende Energie einer der beiden Wirkungsquerschnitte σ_I oder σ_{II} auf Kosten des anderen groß ist. Dies gilt in noch höherem Maße für $(d, 2p)$ -Wirkungsquerschnitte, deren erste Stufe von PEASLEE [4] behandelt wurde. Im Gesamtwirkungsquerschnitt macht sich ein Überwiegen von σ_I oder σ_{II} durch die charakteristische Energieabhängigkeit bemerkbar. Der Beitrag von σ_{III} wird von σ_I und σ_{II} überdeckt werden, die sich in der Größenordnung von 100 mbarns bewegen, während σ_{III} eine Größenordnung von 1 mbarn annimmt. [Im Falle der $(d, 2p)$ -Reaktion setzt jedoch σ_{III} vor σ_I und σ_{II} ein.]

Ein Vergleich mit dem Experiment wird erstens Aufschluß über das Vorwiegen des einen oder anderen Reaktionsmechanismus geben und zweitens Aussagen machen über die Niveaudichte der betreffenden Kerne bzw. über die Gültigkeit des Verdampfungsmodells.

2. Die Reaktionswirkungsquerschnitte σ_I und σ_{II}

Für Deuteronenergien, die groß sind gegenüber der Coulomb-Barriere, und Kernradius R groß gegenüber dem mittleren Deuteronradius d , erhält man durch rein geometrische Überlegungen [5] einen Stripping-Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_s = \frac{1}{2} dR \pi. \quad (1)$$

Wir setzen daher für den Absorptionswirkungsquerschnitt der Deuteronen

$$\sigma_a = R^2 \pi \left(1 - \frac{d}{2R}\right), \quad (2)$$

ein Wirkungsquerschnitt, der offenbar allen Reaktionsmöglichkeiten des einen Deuteronanteils Rechnung trägt, abzüglich jener, in denen der andere Teil den Kern verfehlt, d.h. abzüglich der Stripping-Fälle. Für sehr großen Kernradius R nähert sich σ_a offenbar dem geometrischen Wirkungsquerschnitt.

Um σ_I und σ_{II} zu erhalten, muß σ_a bzw. σ_s mit einem Faktor P multipliziert werden, der nur jene Primärreaktionen auswählt, die die

Emission eines zweiten Neutrons zulassen, und außerdem mit einem Faktor K , der jene Fälle ausscheidet, in denen dem Endkern genügend Anregungsenergie für die Emission eines dritten Teilchens verbleibt. Es ist also

$$P = \int_0^{E_d - T_d} I(\varepsilon) d\varepsilon \bigg/ \int_0^{E_d - T_d + S'_n} I(\varepsilon) d\varepsilon. \quad (3)$$

E_d ist dabei die Energie der anfallenden Deuteronen im Schwerpunktsystem, T_d die Energieschwelle der $(d, 2n)$ -Reaktion und S'_n die Neutronbindungsenergie im Kern $(A+1, Z+1)$, wenn der Anfangskern mit (A, Z) bezeichnet wird. Für T_d ergibt sich in I , II und III

$$T_d = I + S'_n - S'_p, \quad E_d > B \quad (4)$$

wo B die effektive Coulomb-Barriere ist $\left(0,9 \times \frac{Z e^2}{R^2}\right)$, die einzige Art, in der wir ihre Durchlässigkeit berücksichtigen), I die Deuteronbindungsenergie (2,23 MeV) und S'_p die Protonbindungsenergie im Kern $(A+1, Z+1)$. $I(\varepsilon) d\varepsilon$ ist die relative Intensität der ersten Neutronemission (durch Verdampfung im Falle I oder durch Stripping im Falle II). So ergibt sich für P_I mit [2]

$$\left. \begin{aligned} I(\varepsilon) d\varepsilon &\cong \text{const } e^{-\varepsilon/\vartheta(E')} d\varepsilon, \\ E' &= E_n - T_d + S'_n, \\ \vartheta(E') &= \sqrt{E'/\alpha'} = \vartheta', \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

wo sich α' auf die Niveaudichte

$$w(E) = c' e^{2\sqrt{\alpha' E}}$$

des Kerns $(A+1, Z+1)$ bezieht,

$$P_I = \frac{1 - [1 + (E' - S'_n)/\vartheta'] e^{-(E' - S'_n)/\vartheta'}}{1 - (1 + E'/\vartheta')^{-E'/\vartheta'}}. \quad (6)$$

Für P_{II} ist $I(\varepsilon) d\varepsilon$ gegeben durch

$$I(\varepsilon) d\varepsilon = \text{const} \frac{\sqrt{\varepsilon d\varepsilon}}{(2\varepsilon + I - E'_d)^2 + 4I E'_d}, \quad (7)$$

wo $E'_d = E_d - B$. (7) ergibt sich aus der Fourier-Transformierten der Deuteronwellenfunktion

$$\left. \begin{aligned} \psi_d &= \sqrt{\frac{\alpha}{2\pi}} \frac{e^{-\alpha r}}{r} e^{i \vec{k}_d \vec{R}_d} \\ \text{wo} \quad \alpha^2 &= \frac{Im}{\hbar^2}, \quad \vec{R}_d = \frac{\vec{r}_p + \vec{r}_n}{2}, \quad \vec{r} = \vec{r}_p - \vec{r}_n \quad \text{und} \quad k_d^2 = \frac{4mE'_d}{\hbar^2}, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

wenn man annimmt, daß das befreite Neutron mit jenem Impuls entkommt, den es im Augenblick der Deuteronspaltung besaß. Diese Impulsverteilung ist dann

$$I(\vec{k}) = (2\pi)^{-3} \int d\vec{r} \psi_d(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}}, \quad (9)$$

was zu (7) führt.

$$P_{II} = \left[\frac{\sin \varphi}{2} \log \frac{y_1^2 - 2q y_1 + q^2}{y_1^2 - 2q y_1 + q^2} + \cos \varphi \left(\pi - \arctg \frac{2q y_1 \sin \varphi}{y_1^2 - q^2} \right) \right] \times$$

$$\times \left[\frac{\sin \varphi}{2} \log \frac{y_2^2 - 2q y_2 + q^2}{y_2^2 - 2q y_2 + q^2} + \cos \varphi \left(\pi - \arctg \frac{2q y_2 \sin \varphi}{y_2^2 - q^2} \right) \right]^{-1}$$

mit

$$y_1 = |E' - S'_n|, \quad y_2 = |E'|,$$

$$\varphi = \frac{1}{2} \arctg \frac{2 \sqrt{\bar{E}_d I}}{E'_d - I}, \quad q = \left[\frac{(E'_d - I)^2 + 4 E'_d I}{4} \right]^{\frac{1}{4}}. \quad (10)$$

Der Faktor K ist in I und II durch

$$K = \int_{\bar{E}-S_n^*}^{\bar{E}} I(\varepsilon) d\varepsilon / \int_0^{\bar{E}} I(\varepsilon) d\varepsilon \quad (11)$$

gegeben, wo sich $I(\varepsilon)$ auf Neutronenverdampfung durch den Endkern $(A, Z+1)$ bezieht — vorausgesetzt, daß das Neutron von allen Teilchen die niedrigste Bindungsenergie S_n^* hat. \bar{E} ist die mittlere Anregungsenergie des Kerns $(A+1, Z+1)$ vor der Emission des zweiten Neutrons, vermindert um S'_n . Es stellt also die Maximalenergie dar, mit der „im allgemeinen“ das zweite Neutron verdampft werden kann.

Im Falle I ergibt sich so aus (5)

$$\bar{E}_I = \frac{E' - 2\vartheta' + e^{-E'/\vartheta'} (E' - 2\vartheta')}{1 - e^{E'/\vartheta'} (E'/\vartheta' + 1)} - S'_n. \quad (12)$$

Im Falle II ergibt die Stripping-Impulsverteilung (9)

$$\bar{E}_{II} = \frac{E'_d - I + B}{2} + S'_p - S'_n. \quad (13)$$

Es folgt also

$$K_I = \frac{[1 + (\bar{E}_I - S_n^*)/\vartheta_I] e^{-(\bar{E}_I - S_n^*)/\vartheta_I} - \left(1 + \frac{\bar{E}_I}{\vartheta_I}\right) e^{-\bar{E}_I/\vartheta_I}}{1 - (1 + \bar{E}_I/\vartheta_I) e^{-\bar{E}_I/\vartheta_I}} \quad (14)$$

und

$$K_{II} = \frac{[1 + (\bar{E}_{II} - S_n^*)/\vartheta_{II}] e^{-(\bar{E}_{II} - S_n^*)/\vartheta_{II}} - \left(1 + \frac{\bar{E}_{II}}{\vartheta_{II}}\right) e^{-\bar{E}_{II}/\vartheta_{II}}}{1 - (1 + \bar{E}_{II}/\vartheta_{II}) e^{-\bar{E}_{II}/\vartheta_{II}}} \quad (15)$$

mit

$$\vartheta_I = \sqrt{\bar{E}_I/a} \quad \text{und} \quad \vartheta_{II} = \sqrt{\bar{E}_{II}/a},$$

wo sich a auf die Niveaudichte $w(E) = c e^{21aE}$ des Kerns $(A-1, Z+1)$ bezieht.

Schließlich erhält man also

$$\sigma_I = \sigma_a P_I K_I, \quad (16)$$

wo die einzelnen Faktoren durch (2), (6) und (14) gegeben sind, und

$$\sigma_{II} = \sigma_s P_{II} K_{II}, \quad (17)$$

wofür (4), (10) und (15) zuständig sind.

3. Der Wirkungsquerschnitt σ_{III} und abschließende Bemerkungen

Der Wirkungsquerschnitt σ_{III} , der sich aus (d, n) -Stripping mittels einer direkten (p, n) -Oberflächenreaktion ergibt, kann mit Hilfe des Impulsnäherungsverfahrens für solche Reaktionen [1], [3] und Annahme eines einfachen Kernmodells (Potentialtopf) größenordnungsmäßig berechnet werden. Er ergibt sich als über 100mal kleiner als σ_I oder σ_{II} und kann daher vernachlässigt werden.

Mit entsprechenden Abänderungen sollte die Summe von σ_I und σ_{II} auch den $(d, 2p)$ -Gesamtwirkungsquerschnitt ergeben. Die Abänderungen beziehen sich vor allen Dingen auf die Einfügung eines Konkurrenzfaktors G_p in die Verdampfungsintensität der Protonen. Für Neutronen haben wir in der vorliegenden Arbeit $G_n \cong 1$ gesetzt. In noch höherem Maße als bei $(d, 2n)$ -Reaktionen gilt hier, daß sich der Wirkungsquerschnitt σ_s auf Kosten von σ_a durch Deuteronpolarisation vergrößern kann, so daß der Teilwirkungsquerschnitt σ_I , der ohnehin schon mit zwei Konkurrenzfaktoren behaftet ist, noch kleiner wird. Infolge von $\bar{E}_I(12) > \bar{E}_{II}(13)$ wird er auch früher absinken als σ_{II} . Das letztere gilt natürlich auch für den in dieser Arbeit behandelten $(d, 2n)$ -Wirkungsquerschnitt.

Literatur

- [1] AUSTERN, N., S. T. BUTLER and H. McMANUS: Phys. Rev. **92**, 350 (1953). — [2] BLATT, J. M., and V. F. WEISSKOPF: Theoretical Nuclear Physics. New York: Wiley & Sons 1952. — [3] CHEW, G.: Phys. Rev. **80**, 196 (1950). — [4] PEASLEE, D. C.: Phys. Rev. **74**, 1001 (1948). — [5] SERBER, R.: Phys. Rev. **72**, 1008 (1947).

Aus der Comisión Nacional de la Energía Atómica, Buenos Aires (Argentinien)

Die Ausbeute der Kernreaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$

Von

R. RADICELLA, J. RODRIGUEZ, G. B. BARÓ und O. HITTMAIR

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 10. Oktober 1957)

Es wurde der totale Wirkungsquerschnitt der Reaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}$ bestimmt, indem ihre Sättigungsaktivität mit jener der gleichzeitig verlaufenden Reaktion $\text{Al}^{27}(d, p\alpha)\text{Na}^{24}$ verglichen wurde, deren Wirkungsquerschnitt bekannt ist [1]. Die höchste verwendete Deuteronenergie betrug 28 MeV. Nach Beschreibung der Bestrahlungs- und Meßtechnik wird das erhaltene Ergebnis in bezug auf den Reaktionsweg diskutiert. Von den vorhandenen Möglichkeiten scheint Totalabsorption des Deuterons mit nachfolgender Protonenverdampfung die bevorzugte zu sein.

1. Einleitung

Von allen radioaktiven Isotopen, die sich aus Al^{27} durch Bestrahlung mit Deuteronen bilden, haben nur Na^{24} , Mg^{27} und Al^{28} eine längere Halbwertszeit als 1 min. Die Reaktionen, die zu diesen Isotopen führen, sind $(d, p\alpha)$, $(d, 2p)$ und (d, p) .

Die Analyse der β -Zerfallskurve des mit Deuteronen bestrahlten Aluminiums zeigt nur die entsprechenden drei Perioden und gestattet es daher, die Aktivität der drei Isotope bei Bestrahlungsschluß zu ermitteln, ohne daß es notwendig wäre eine chemische Trennung durchzuführen.

Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $\text{Al}^{27}(d, p\alpha)\text{Na}^{24}$ wurde von BATZEL u. Mitarb. [1] als Funktion der Bestrahlungsenergie ermittelt. Es ist daher möglich, durch Vergleich der Sättigungsaktivität des Na^{24} mit der des Mg^{27} den Wirkungsquerschnitt für die Bildung des letzteren zu bestimmen.

$$\frac{A_s(\text{Mg}^{27})}{A_s(\text{Na}^{24})} = \frac{\sigma(d, 2p)}{\sigma(d, p\alpha)}. \quad (1)$$

2. Technik der Bestrahlung

Für jede Bestrahlung wurde eine Aluminiumfolie der Dicke 6,5 mg/cm² in eine andere ebensolche Aluminiumfolie eingehüllt, um den Verlust durch den Rückstoß der geformten Kerne auszugleichen. Die Reinheit des Aluminiums wurde spektroskopisch überprüft, um vor Magnesiumverunreinigungen sicher zu sein.

Hierauf wurde durch den Deuteronenstrahl im Inneren des Synchrozyklotrons der Comisión Nacional de la Energía Atómica in Buenos Aires bestrahlt.

3. Technik der Messung

Die Messungen der β -Aktivität der bestrahlten Proben wurden mit Geiger-Müller-Zählrohren mit Mica-Fenster der Dicke $1,9 \text{ mg/cm}^2$ durchgeführt. Die gemessene Probe war ein Teil der bestrahlten Folie von einer Größenordnung kleiner als $0,01 \text{ mg}$, wodurch eine „Punktquelle“ erhalten wurde.

Die Messungen wurden am Tage der Bestrahlung während 5 oder 6 Std durchgehend ausgeführt und in den folgenden 2 oder 3 Tagen alle 5 Std. In manchen Fällen wurde durchgehend während 60 Std nach der Bestrahlung gemessen mit Hilfe eines Integrators mit logarithmischem Verstärker [2] und Registrierer.

In allen Experimenten zeigte die Analyse der Zerfallskurve nur die drei vorhergesehenen Perioden. Die Zerfallskurven des Mg^{27} und Na^{24} wurden zum Bestrahlungsschluß extrapoliert, woraus sich die entsprechende Aktivität der beiden Nukleide in der bestrahlten Probe ergab. Für beide wurde hierauf die Sättigungsaktivität berechnet.

Um schließlich das Aktivitätsverhältnis bezüglich der verschiedenen β -Energien zu korrigieren, wurden die Faktoren von ZUMWALDT [3] benützt.

Wie jedoch wegen der Bestrahlungsenergien für die betrachteten Nukleide zu erwarten war, ergab das Produkt der Korrekturfaktoren einen Wert, der praktisch gleich 1 war. Es konnten also die Sättigungsaktivitäten direkt verglichen werden.

4. Ergebnisse

Mittels der bekannten Wirkungsquerschnitte für die Reaktion $\text{Al}^{27}(d, p\alpha)\text{Na}^{24}$ konnte nach (1) der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$ bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in

Tabelle 1

Energie der Deuteronen (MeV)	Wirkungsquerschnitt (mbarn)
28 $\pm 0,5$	12,5 $\pm 0,2$
26 $\pm 0,5$	15,9 $\pm 0,2$
20,2 $\pm 0,5$	26,6 $\pm 1,8$
17,6 $\pm 0,5$	22,4 $\pm 1,5$
15 $\pm 0,5$	14,7 $\pm 0,5$
10 ± 1	Schwelle

Tabelle 1 gegeben. Für jede Deuteronenergie wurden im Durchschnitt fünf Bestimmungen durchgeführt.

Als Fehler wurden die mittleren Abweichungen vom Mittelwert angegeben. Man sieht, daß die Werte, die den Energien 17,6 und 20,2 MeV entsprechen, einen viel größeren Fehler enthalten als

die anderen. Der Grund hierfür ist die Schwierigkeit, bei jedem Experiment die Bestrahlungsbedingungen exakt zu wiederholen, was bei diesen Energien besonders deutlich wird, da die Erregungsfunktion der Reaktion $\text{Al}^{27}(d, p\alpha)\text{Na}^{24}$ hier eine besonders ausgeprägte Steigung aufweist.

5. Diskussion

Wie bereits in einer früheren Arbeit [4] festgestellt wurde, können Reaktionen der Art $(d, 2p)$ praktisch auf zwei verschiedene Weisen vor sich gehen: entweder wird das ganze Deuteron absorbiert, worauf der so gebildete Zwischenkern zwei Protonen verdampft (Wirkungsquerschnitt σ_I), oder es erfolgt Stripping. Die Stripping-Reaktion kann zur Bildung eines Zwischenkerns und anschließender Protonverdampfung führen (Wirkungsquerschnitt σ_{II}).

Die angenäherte Berechnung dieser Teilwirkungsquerschnitte kann gemäß den Formeln in [4] erfolgen, wenn man bei den jeweiligen Trennungsenergien dem Coulomb-Effekt für die verdampften Protonen Rechnung trägt, den Umstand berücksichtigt, daß sich bei Stripping das Proton des Deuterons dem Kern nur bis auf den Deuterondurchmesser d annähern muß und in die Verdampfungsintensitäten einen Konkurrenzfaktor einführt, der die relative Wahrscheinlichkeit für Protonemission angibt. Dieser Faktor ist größenordnungsmäßig durch

$$G_p \cong \frac{e^{-(B_p + S_p)/\vartheta}}{\sum e^{-(B_i + S_i)/\vartheta}} \quad (2)$$

gegeben, wo B_i die effektive Coulomb-Barriere für Protonen bzw. α -Teilchen bedeutet und B_n natürlich gleich Null ist. ϑ bezeichnet die Temperatur der maximalen Emissionsenergie ε :

$$\vartheta = \sqrt{\varepsilon/a}, \quad (3)$$

wo die Konstante a durch die Niveaudichte des emittierenden Kerns bestimmt wird.

$$w(E) = c e^{2\sqrt{aE}}. \quad (4)$$

Vergleicht man den Wirkungsquerschnitt σ_{II} , der sich auf Deuteron-Stripping mit anschließender Protonverdampfung bezieht, mit den gemessenen Werten, so sieht man, daß schon dieser Wirkungsquerschnitt allein für die Energien 26 und 28 MeV der Deuteronen viel zu große

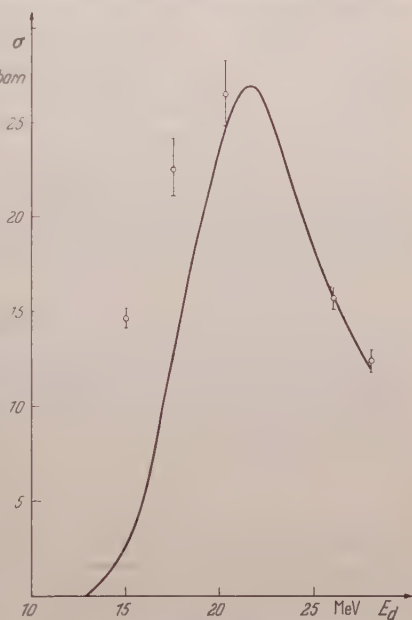


Fig. 1. Experimentelle Werte des Wirkungsquerschnitts der Reaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$ und theoretische Kurve für σ_I

Werte ergibt (etwa das Doppelte der gemessenen). Es erweist sich als unmöglich, bei Einbeziehung von σ_{II} das Abnehmen des gemessenen Wirkungsquerschnitts auf die angegebenen Werte zu erklären.

Es muß also der Wirkungsquerschnitt σ_1 für Totalabsorption des Deuterons mit anschließender Verdampfung zweier Protonen angenähert den Gesamtwirkungsquerschnitt beschreiben. Mit der Konstantenwahl $a = 1,68$ in der Niveaudichte w (4) von Al^{28} und $a = 27$ in jener von Si^{29} erhält man die in Fig. 1 angegebene Kurve.

Ohne sich auf die quantitative Annäherung in diesem für die Kontinuumtheorie und das Verdampfungsmodell nicht sehr günstigen Fall zu sehr zu stützen, muß man aus dem verhältnismäßig raschen Abfall der gemessenen Werte den Schluß ziehen, daß sich die $(d, 2p)$ -Reaktion vorwiegend über Totalabsorption des Deuterons vollzieht. Nur bei diesem Reaktionsweg bleibt nämlich dem Endkern im Mittel genügend Anregungsenergie übrig, daß er durch Neutronemission die $(d, 2p)$ -Ausbeute entsprechend verringern kann.

Literatur

- [1] BATZEL, R. E., W. W. T. CRANE and G. D. O'KELLEY: Phys. Rev. **91**, 939 (1953). — [2] FRÄNZ, K.: Publ. Com. Nac. Energ. Atómica, Ser. Física **1**, No. 6 (1955). — [3] ZUMWALT, L. R.: A. E. C. U.-567, 1950. — [4] HITTMAIR, O.: Z. Physik (im Druck).

Aus dem Institut für Physik im Max-Planck-Institut für medizinische Forschung,
Heidelberg und dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

Die Art der Gamow-Teller-Wechselwirkung beim Zerfall von Li^8

Von

K. H. LAUTERJUNG, B. SCHIMMER* und H. MAIER-LEIBNITZ**

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 27. März 1958)

Ziel dieser Arbeit war, aus der Elektron-Antineutrino-Winkelkorrelation beim Zerfall des Li^8 eine Entscheidung darüber abzuleiten, ob beim Gamow-Teller-Zerfall tensorielle oder achsiale Kopplung vorliegt. Die experimentellen Ergebnisse zeigen das Überwiegen der achsialen Kopplung.

Li^8 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 0,84 sec durch Emission von Elektronen mit einer maximalen kinetischen Energie von 13 MeV in Be^8 , das seinerseits bevorzugt aus einem mit 3 MeV angeregten Niveau in 2 α -Teilchen zerfällt. Zum Nachweis des Rückstoßes beim β -Zerfall kann der Energieunterschied der α -Teilchen dienen, der bis zu 400 keV beträgt.

Das Li^8 wurde im Heidelberger Zyklotron durch die Reaktion $\text{Li}^7(d,p)\text{Li}^8$ an einer Li_2O -Schicht erzeugt. Nachdem die Li^8 -Ionen in einer Stickstoffatmosphäre abgebremst und durch ein elektrisches Saugfeld auf einer 1 mm² großen Al-Folie (0,24 mg/cm²) gesammelt worden waren, wurde diese innerhalb 1 sec in die 150 cm vom Bestrahlungsort entfernte Zählposition (Fig. 1) gezogen. In dieser konnten die Energien der beiden gegeneinander unter $180^\circ \pm 2^\circ$ wegfliegenden α -Teilchen mit den Methandurchströmten Proportionalzählrohren $P_{\alpha 1}$, $P_{\alpha 2}$, die Energie des zugehörigen, unter 45° gegen die Richtung des $\alpha 1$ -Teilchens wegfliegenden β -Teilchens mit einem der beiden Anthrazen-Szintillationszähler $S_{\beta 1}$, $S_{\beta 2}$ bestimmt werden. Die gesamte Zählordnung der Fig. 1 befand sich in einer evakuierten Kammer.

Die Registrierung eines Li^8 — Be^8 -Zerfalls geschah in der durch Fig. 2 beschriebenen Weise auf dem Schirm eines Oszilloskops, das durch eine 3fach-Koinzidenz $\alpha\alpha\beta$ hellgesteuert wurde. Die in den Zähler $S_{\beta 2}$ eintretenden β -Teilchen lieferten einen negativen Impuls auf die γ -Platten, erzeugten also eine von dem Punkt nach unten laufende Schleife. Nach vorausgegangener Energie-Eichung der beiden Achsen konnten die

* MPI Heidelberg.

** TH München.

Energien der α - und β -Teilchen aus den Koordinaten der photographierten Schirmbilder bestimmt werden. Während die echten $\alpha\alpha\beta$ -Koinzidenzen durch einen anfänglich steilen Anstieg in der y -Richtung und einen glatten Kurvenverlauf gekennzeichnet sind, unterscheiden sich

die zufälligen $\alpha\alpha\beta$ -Koinzidenzen empfindlich von jenen durch eine irreguläre Kurvenform.

In dem hier vorliegenden Fall des polarisierten Endkerns Be^8 hat die Häufigkeitsverteilung die allgemeine Form*

$$N(\beta, \nu) = 1 + d \cdot \cos \beta \cdot \cos \nu, \quad (1)$$

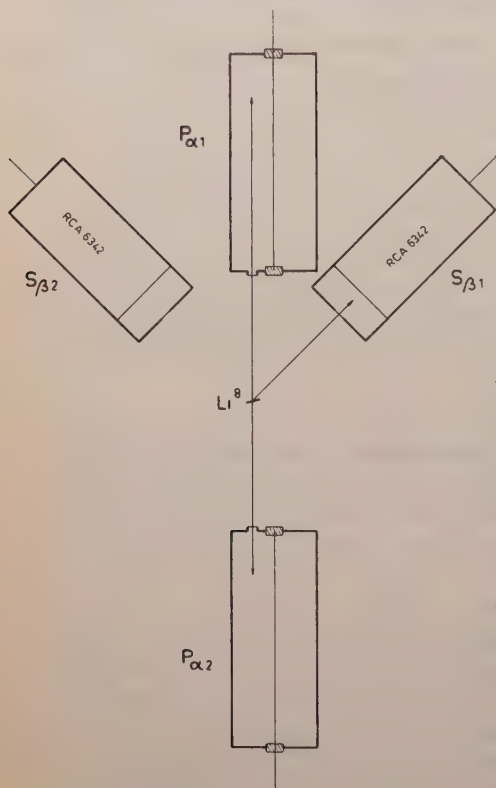


Fig. 1. Zählordnung für den Zerfall des Li^8 . $P_{\alpha 1}$, $P_{\alpha 2}$ Methandurchströmte Proportionalzählrohre für α -Teilchen. $S_{\beta 1}$, $S_{\beta 2}$ Anthrazen-Szintillationszähler für β -Teilchen. Li^8 Li^8 -Quelle auf Al-Folie

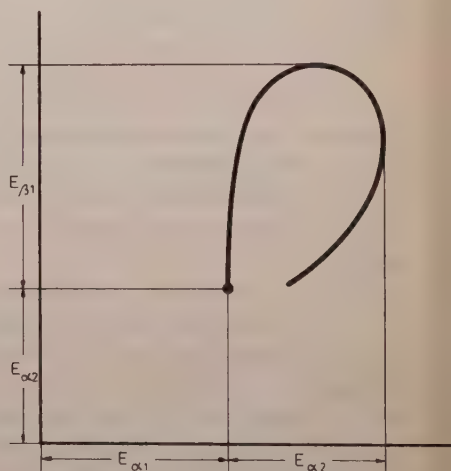


Fig. 2. Oszilloskop-Schirmbild eines Li^8 - Be^8 -Zerfalls. $E_{\alpha 1}$, $E_{\alpha 2}$, $E_{\beta 1}$ die den Koordinaten proportionalen Energien der α - bzw. β -Teilchen

wo β bzw. ν der Winkel zwischen der Richtung des β -Teilchens bzw. Antineutrinos und der des $\alpha 1$ -Teilchens ist. Bei tensorieller Wechselwirkung (T) ist $d = +1$, bei achsialer (A) ist $d = -1$. In unserem speziellen Fall ist $\angle \beta = 45^\circ$.

Aus Energie- und Impulsgründen gilt, wenn $\alpha 1$ -Teilchen und Antineutrino bevorzugt unter 0° wegfiegen, also

$$\text{bei } T \text{ für alle } \beta\text{-Energien} \quad \frac{N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})}{N(E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2})} > 1,$$

* Wir danken Herrn B. STECH für die Mitteilung dieser Formel.

wo $N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})$ die Zahl der Ereignisse mit den α -Energien $E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2}$ ist. Dagegen ist, wenn $\alpha 1$ -Teilchen und Antineutrino bevorzugt unter 180° wegfiegen, also

$$\text{bei } A \text{ für kleine } \beta\text{-Energien} \quad \frac{N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})}{N(E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2})} < 1,$$

$$\text{für große } \beta\text{-Energien} \quad \frac{N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})}{N(E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2})} > 1.$$

Das Verhältnis der Zahl der echten $\alpha\alpha\beta$ -Ereignisse zu beiden Seiten der „Null-Linie“ des Schirmbildes (für die $E_{\alpha 1} = E_{\alpha 2}$ ist) bei kleinen und bei großen β -Energien erlaubt also bereits die Entscheidung, ob T oder A überwiegt.

Die Lage der „Null-Linie“ wurde aus der Gleichverteilung der zufälligen $\alpha\alpha\beta$ - und der getrennt aufgenommenen $\alpha\alpha$ -Koinzidenzen bestimmt. Von den insgesamt vorliegenden echten $\alpha\alpha\beta$ -Ereignissen wurden nur die mit $E_{\alpha 1}$ und $E_{\alpha 2} \leq 2 \text{ MeV}$ analysiert, um höhere Anregungszustände des Be^8 auszuschließen. Sie wurden in eine Gruppe mit $E_\beta \leq 4 \text{ MeV}$ und eine mit $E_\beta > 4 \text{ MeV}$ sortiert. Die Auswertung lieferte

$$\text{für } E_\beta \leq 4 \text{ MeV: } \frac{N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})}{N(E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2})} = \frac{68}{105} = 0,65 \pm 0,10, \quad (2)$$

$$\text{für } E_\beta > 4 \text{ MeV: } \frac{N(E_{\alpha 1} < E_{\alpha 2})}{N(E_{\alpha 1} > E_{\alpha 2})} = \frac{155}{106} = 1,46 \pm 0,18. \quad (3)$$

Es konnte gezeigt werden, daß die Ergebnisse (2) und (3) nicht eine Folge apparativ bedingter Asymmetrien waren, und zwar einerseits durch einen Kontrollversuch mit den β -Zählern unter 90° gegen die α -Zähler, bei dem die nach Gl. (1) dann zu erwartende isotrope Verteilung der Antineutrinos nachgewiesen wurde, und andererseits durch systematische Kommutation der Elektronik.

Die Versuche zeigen also, daß die achsiale Kopplung die tensorielle Kopplung mindestens deutlich überwiegt. Dieses Resultat ist im Widerspruch mit den bisherigen Messungen am He^6 .

Die Versuche werden fortgesetzt. Ihre ausführliche Beschreibung soll später erfolgen.

Herrn J. H. D. JENSEN danken wir für wertvolle Diskussionen. Der Zyklotrongruppe unter Herrn U. SCHMIDT-ROHR gilt unser besonderer Dank. Die Arbeit wurde unter Verwendung von Mitteln der Deutschen Forschungsgemeinschaft durchgeführt.

Autorenverzeichnis des 150. Bandes

- ARTMANN, K., Die Bedeutung der Hartreeschen Atomeigenfunktionen für die Quantenchemie. S. 573.
- ASCOLI, G., Transformation of "Spin Direction" by Ordinary Lorentz Transformation. S. 407.
- BARÓ, G. B. s. RADICELLA, R., J. RODRÍGUEZ und O. HITTMAYER. S. 653.
- BARTELS, H., und R. BEUCHELT, Berichtigung zur Arbeit: Über die typischen Erscheinungsformen im Spektrum dichter Plasmen. I. Erschienen in Bd. 149, S. 594—607 (1957). S. 526.
- BAYH, W., Emissionsmikroskopie mit Sekundärelektronen (15 keV-Primärelektronen). S. 10.
- BEHR, J. v., Die Berechnung der Kern-Quadrupol-Streuung positiver Myonen im schwach relativistischen Energiebereich. S. 311.
- BEUCHELT, R. s. BARTELS, H. S. 526.
- BIELENLEIN, H., R. FLEISCHMANN und H. WEGENER, Die Polarisation der Co^{60} -Elektronen. S. 80.
- BÖCKMANN, K., G. KRAMER und W. R. THEIS, Der Einfluß der Polarisation auf die Wirkungsquerschnitte für Møller- und Bhabha-Streuung. S. 201.
- BÖTTCHER, W., Quantitative Messung des 3^3P -Serienkontinuums von Mg. S. 336.
- BOLDT, G., Messung der Absorptionsoszillatorenstärke der Magnesium-Interkombinationslinie bei 4571 Å. S. 205.
- BORN, M., und W. LUDWIG, Zur Quantenmechanik des kräftefreien Teilchens. S. 106.
- BRIX, P., U. HEGEL, K. H. LINDENBERGER und D. QUITMANN, Relativmessung integrierter Wirkungsquerschnitte für den Kernphotoeffekt: Die Reaktion $\text{Ca}^{44}(\gamma, p)\text{K}^{43}$. S. 461.
- CALIFANO, S., und M. CZERNY, Absorptionsverlauf bei NaCl und KBr im kurzwelligen Ultrarot. S. 1.
- CAPPELLER, U., und R. KLINGELHÖFER, Über die Messung der Winkelkorrelationen im γ -Spektrum des ^{169}Tm . S. 375.
- CZERNY, M. s. CALIFANO, S. S. 1.
- DANIEL, H., β -Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58} . S. 144.
- DAVID, E., Physikalische Vorgänge bei elektrischen Drahtexplosionen. S. 162.
- DESTRIAU, G., Der Gedächtniseffekt bei der Verstärkung der Lumineszenz durch elektrische Felder. S. 447.
- DRECHSEL, W. s. KRANZ, J. S. 632.
- EASTMAN, P. C. s. SODHA, M. S. S. 242.
- EICHLER, J. s. GUDDEN, F. S. 436.
- ENGELMANN, F., Bemerkungen zur Einführung des 3-dimensionalen Ladungsraums. S. 456.
- FLEISCHMANN, R. s. BIELENLEIN, H., und H. WEGENER. S. 80.
- FLUNKERT, H. s. MÜSER, H. E. S. 21.
- FROMMHOLD, L., Zur Statistik der Elektronenlawinen im ebenen Feld. II. S. 172.
- GEBHARDT, W., und O. OSBERGHAUS, Ein Halbleiterdetektor für Schwefel- und Selenmolekularstrahlen. S. 33.
- GIELESSSEN, J. s. KLITZING, K. H. v. S. 409.
- GRIFFITH, R. LL. s. HOPKINS, M. R. S. 325.
- GUDDEN, F., und J. EICHLER, Winkel- und Energieverteilung der Photoprotonen aus dem Prozeß $\text{A}^{40}(\gamma, p)\text{Cl}^{39}$. S. 436.
- HAHN, D., und F. W. SEEMANN, Berichtigung zur Arbeit: Die Bedeutung von Randschichten und Polarisationsfeldern für die Elektrolumineszenz. Erschienen in Bd. 149, S. 486—503 (1957). S. 122.
- HAHN, H. s. LEIBFRIED, G. S. 497.
- HANSZEN, K.-J., Der Einfluß von Oberflächenfremdschichten auf die Strukturveränderungen dünner Metallaufdampfschichten beim Tempern. S. 527.

- HAUSER, U., Energiereiche γ -Übergänge geringer Intensität beim Zerfall $^{131}_{83}\text{Bi}^{214}(\text{RaC}) \xrightarrow{\beta} ^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. S. 593.
- HAUSER, U., Über den γ - und α -Zerfall der angeregten Zustände von $^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. S. 599.
- HEGEL, U. s. BRIX, P., K. H. LINDENBERGER und D. QUITMANN. S. 461.
- HEINTZE, J., Relativmessungen der Polarisation von β -Teilchen Tl^{204} , Au^{198} , $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$. S. 134.
- HERRE, F., und H. RICHTER, Berechnung der Atomverteilungskurven verschiedener Strukturmodelle. S. 149.
- HETTNER, G., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. S. 182.
- HITTMAIR, O., Ausbeute von $(d, 2n)$ -Reaktionen im Kontinuumbereich. S. 648.
- s. RADICELLA, R., J. RODRÍGUEZ und G. B. BARÓ. S. 653.
- HOPKINS, M. R., and R. L. GRIFFITH, The determination of the Lorentz number at high temperatures. S. 325.
- JACKSON, J. D., S. B. TREIMAN and H. W. WYLD jr., Note on Relativistic Coulomb Wave Functions. S. 640.
- JUNGER, G., s. MÖLLENSTEDT, G., und H. SEILER. S. 16.
- KESSEMEIER, H., Über die Wirkung eines Doppelgitters auf die Ladungsträger einer unselbständigen Entladung. S. 272.
- KLIER, M., Die Temperaturabhängigkeit der optischen Konstanten von Lithiumfluorid und Natriumfluorid im Ultraroten. S. 49.
- KLINGELHÖFER, R. s. CAPPELLER, U. S. 375.
- KLITZING, K. H. v., und J. GIELESSEN, Über den Einfluß allseitigen Drucks auf die Magnetisierbarkeit von Au_2Mn . S. 409.
- KOHLER, M., Invariante Flächen der Elektrodynamik. S. 118.
- KOPPE, H., Eine Extremaleigenschaft der freien Energie. S. 64.
- s. MÜHLSCHLEGEL, B. S. 474.
- KRAMER, G. s. BÖCKMANN, K., und W. R. THEIS. S. 201.
- KRANZ, J., und W. DRECHSEL, Über die Beobachtung von Weißschen Bereichen in polykristallinem Material durch die vergrößerte magnetooptische Kerndrehung. S. 632.
- KRETSCHMAR, M., Über die multiple Mesonenproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen und bei der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung. S. 247.
- KRISHNAMURTHY, V. G., Ultra-violet bands of mercury chloride. S. 287.
- KRUSCHINSKI, L. s. SCHORYGIN, P. S. 332.
- LÄMMERMANN, H., Zeeman-Effekt und Analyse der Spektren des dreiwertigen Samariums in Einkristallen verschiedener Symmetrie. S. 551.
- LAUTERJUNG, K. H., B. SCHIMMER und H. MAIER-LEIBNITZ, Die Art der Gamow-Teller-Wechselwirkung beim Zerfall von Li^8 . S. 657.
- LEIBFRIED, G., und H. HAHN, Zur Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten von Alkalihalogenidkristallen. S. 497.
- LEIPFINGER, H., Die magnetischen Eigenschaften von seltenen Erdmetallen bei sehr tiefen Temperaturen. S. 415.
- LINDENBERGER, K. H. s. BRIX, P., U. HEGEL und D. QUITMANN. S. 461.
- LUDWIG, G., Zum Ergodensatz und zum Begriff der makroskopischen Observablen. I. S. 346.
- LUDWIG, W. s. BORN, M. S. 106.
- MAIER-LEIBNITZ, H. s. LAUTERJUNG, K. H., und B. SCHIMMER. S. 657.
- MARSCHALL, H., und TH. SCHMIDT, Potentialkurven und Energieniveaus der μ -Mesonenmoleküle $(pp)\mu$, $(dp)\mu$, $(dd)\mu$. S. 293.
- MINTEN, A., und O. OSBERGHAUS, Die Erzeugung von intensiven Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase. Wirkungsquerschnitte für den Stoß $\text{H}_2\text{—H}_2$ und $\text{H}_2\text{—N}_2$. S. 74.
- MÖLLENSTEDT, G., H. SEILER und G. JUNGER, Ionenbilder in Durchstrahlung. S. 16.
- MÜHLSCHLEGEL, B., und H. KOPPE, Theorie der Vielfachstreuung polarisierter Elektronen. S. 474.

- MÜSER, H. E., und H. FLUNKERT, Obere Curie-Temperatur und Domänenstruktur in verschiedenen Gebieten von Seignettesalz-Kristallen. S. 21.
- NEUHAUS, H., Die Hyperfeinstruktur der Indiumhydrid-Banden. S. 4.
- OSBERGHAUS, O. s. GEBHARDT, W. S. 33.
- s. MINTEN, A. S. 74.
- QUITMANN, D. s. BRIx, P., U. HEGEL und K. H. LINDENBERGER. S. 461.
- RADICELLA, R., J. RODRÍGUEZ, G. B. BARÓ und O. HITTAIR, Die Ausbeute der Kernreaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$. S. 653.
- RAETHER, M., Das Zerfallsschema des Ag^{105} . S. 38.
- REIMER, L., Magnetische Eigenschaften und elektronenmikroskopische Struktur elektrolytisch niedergeschlagener dünner Schichten aus Nickel-Eisen-Legierungen. S. 99.
- REIMER, L., Messungen des Hall-Effektes an ferromagnetischen Nickelschichten. S. 277.
- RICHTER, H. s. HERRE, F. S. 149.
- RISCH, K., Das Spektrum der *M*- und *L*-Auger-Elektronen von $^{212}_{83}\text{Bi}$ und $^{208}_{81}\text{Tl}$. S. 87.
- RODRÍGUEZ, J. s. RADICELLA, R., G. B. BARÓ und O. HITTAIR. S. 653.
- SCHIMMER, B. s. LAUTERJUNG, K. H., und H. MAIER-LEIBNITZ. S. 657.
- SCHMIDT, Th. s. MARSCHALL, H. S. 293.
- SCHMIDT-TIEDEMANN, K. J., Elektronennachlieferung in den Gasen N_2 , H_2 und O_2 bei niedrigen Drucken ($p d \approx 50 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$). S. 299.
- SCHMILLEN, A., Zur Frage der Energieübertragung in festen Polyacetalösungen. S. 123.
- SCHÖNHOFER, A., Zur Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bändermodell des Festkörpers. S. 67.
- SCHORYGIN, P., und L. KRUSCHINSKI, Abhängigkeit der Intensität der Raman-Linien von der Frequenz des Erregerlichtes im Resonanzgebiet. S. 332.
- SEEMANN, F. W. s. HAHN, D. S. 122.
- SEILER, H. s. MÖLLENSTEDT, G., und G. JUNGER. S. 16.
- SODHA, M. S., and P. C. EASTMAN, Mobility of electrons in nondegenerate semiconductors considering electron-electron scattering. S. 242.
- STICHEL, P., Die Frage der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen. S. 264.
- THEIS, W. R., Der Einfluß der Elektronenpolarisation auf den Wirkungsquerschnitt für Paarvernichtung im Flügel. S. 198.
- THEIS, W. R., Eine Rangordnung der einzelnen Terme in den schwachen Wechselwirkungen. S. 590.
- s. BÖCKMANN, K., und G. KRAMER. S. 201.
- TREIMAN, S. B. s. JACKSON, J. D., and H. W. WYLD jr. S. 640.
- VOIGTLAENDER-TETZNER, G., Zur Theorie der röntgenographischen Verteilungskurven von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen. S. 215.
- WEGENER, H. s. BIENLEIN, H., und R. FLEISCHMANN. S. 80.
- WEIDENMÜLLER, H.-A., Nukleonenpolarisation bei Stripping-Reaktionen. S. 389.
- WIENECKE, R., Über das Auftreten von Dampfstrahlen in Kohlelichtbögen hoher Stromstärken. I. S. 231.
- WULFF, H., Die Linienprofile thermisch angeregter Heliumlinien. S. 614.
- WYLD jr., H. W. s. JACKSON, J. D., and S. B. TREIMAN. S. 640.

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND, 1. HEFT

MIT 65 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 21. DEZEMBER 1957)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von *K. Scheel* und *H. Geiger*, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von *M. v. Laue* und *R. W. Pohl*. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—.

Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Es wird ausdrücklich darauf aufmerksam gemacht, daß mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag das ausschließliche Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder an den Verlag übergeht. Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind, und die auch nachträglich nicht anderweitig zu veröffentlichen der Autor sich verpflichtet.

Es ist ferner ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages nicht gestattet, photographische Vervielfältigungen, Mikrofilme, Mikrophote u.ä. von den Zeitschriftenheften, von einzelnen Beiträgen oder von Teilen daraus herzustellen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihren Arbeiten 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin W 35, Reichpietschur 20, Tel. 24 92 51,
Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28-30, Tel. 27901

150. Band	Inhalt	1. Heft Seite
CALIFANO, S., und M. CZERNY, Absorptionsverlauf bei NaCl und KBr im kurzwelligen Ultrarot. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 17. September 1957)		1
NEUHAUS, H., Die Hyperfeinstruktur der Indiumhydrid-Banden. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 5. September 1957)		4
BAYH, W., Emissionsmikroskopie mit Sekundärelektronen (15 keV-Primärelektronen). Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 7. September 1957)		10
MÖLLENSTEDT, G., H. SEILER und G. JUNGER, Ionenbilder in Durchstrahlung. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 19. August 1957)		16
MÜSER, H. E., und H. FLUNKERT, Obere Curie-Temperatur und Domänenstruktur in verschiedenen Gebieten von Seignettesalz-Kristallen. Mit 10 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. Juli 1957)		21
GEBHARDT, W., und O. OSBERGHAUS, Ein Halbleiterdetektor für Schwefel- und Selenmolekularstrahlen. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. September 1957)		33
RAETHER, M., Das Zerfallsschema des Ag^{105} . Mit 12 Figuren im Text. (Eingegangen am 14. September 1957)		38

Fortsetzung des Inhaltsverzeichnisses siehe Umschlagseite 3

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Ein Werk von internationalem Rang

MAX PLANCK

Physikalische Abhandlungen und Vorträge

Aus Anlaß des 100. Geburtstages (am 23. 4. 1958) Max Plancks geben die Physikalische Gesellschaft Berlin und die Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften Göttingen seine grundlegenden Aufsätze und Vorträge erstmalig geschlossen in drei Bänden heraus. Das Vorwort schrieb Prof. Dr. M. von Laue.

Die drei Ganzleinenbände mit einem Gesamtumfang von etwa 1900 Seiten nebst Register erscheinen Mitte Januar. Ende Februar und im März 1958. Der Kauf des Bandes 1 verpflichtet zur Abnahme aller drei Bände. Der Preis für Band 1 bis 3 beträgt DM 150.—, **bis zum 5. 2. 58 DM 135.—**

Sonderprospekt (mehrseitig, dreisprachig und mit vollem Inhaltsverzeichnis) bitte vom Verlag anfordern!

FRIEDR. VIEWEG & SOHN · BRAUNSCHWEIG



**RÖNTGEN-FEINSTRUKTURUNTERSUCHUNGEN
UND RÖNTGEN-SPEKTRALANALYSE**

mit

**MÜLLER MIKRO 91
MÜLLER MIKRO 101
MÜLLER MIKRO 111**

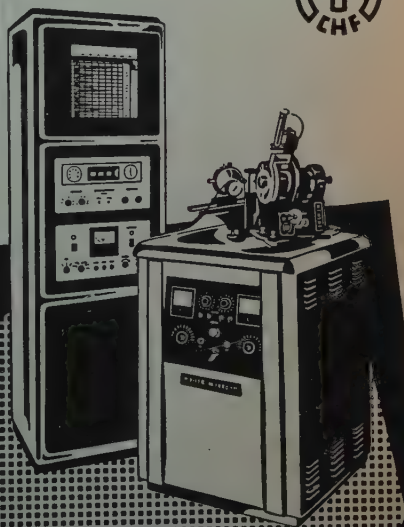
und

PHILIPS DIFFRAKTOMETER

C.H.F. MÜLLER

AKTIENGESellschaft

RÖNTGENWERK · HAMBURG



Spiegel-

Einfach- und Doppel-

Monochromatoren

Carl Leiss

Berlin-Steglitz, Feuerbachstr. 26



Silizium-Photoelemente

10 fache Leistung

Höchste Konstanz, temperaturbeständig, ermüdungsfrei, geringe Trägheit, Empfindlichkeitsbereich 300—1800 nm, korrosionsfest und unempfindlich gegen Feuchtigkeit.

In verschiedener Ausführung mit Anschlußklemmen, Schraub- und Steckfassung von 4—30 mm Ø.

Zellenbatterien für 2 und 6 V.

Verlangen Sie Liste 1 S./Z. P.

Spezialfabrik

lichtelektrischer Zellen und Apparate

Dr. B. LANGE

Berlin-Zehlendorf, Hermannstraße 14—18

Fernruf: 84 30 51 — Drahtanschrift: Photozelle Berlin — Fernschreiber: 018 31 63

Luftlektrizität und Radioaktivität

Von **Hans Israël**, Professor an der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule und Leiter des Meteorologischen Observatoriums Aachen des Deutschen Wetterdienstes. (Verständliche Wissenschaft 62. Band) 1.—6. Tausend. Mit 86 Abbildungen. VIII, 125 Seiten Kl.-8^o. Ganzleinen DM 7.80

Inhaltsverzeichnis: **Übersicht.** Grundtatsachen. Instrumentelles. Allgemeiner Überblick. — **Grundlagen.** (Der Mechanismus der atmosphärischen Elektrizitätsbewegung; Physik der Gasionen). Die Luft leitet. Einiges aus der Physik der Gasionen: Die Entstehung der Ionen. Ionisationsgleichgewicht. Die Beweglichkeit der Ionen. Ionen im elektrischen Feld. Die Ermittlung der Ionenkonstanten. — **Das „Aerosol“ und seine Veränderungen.** Kleinionen, Großionen, Kondensationskerne. Aerosol und Wetter: Kerngehalt und Leitfähigkeit. Der atmosphärische Austausch. Luftelektrische Wirkungen des Austausches. — **Felder und Ströme der Atmosphäre: Entstehung.** Luftelektrische Stromkreise. Der „Austausch-Generator“. Der „Gewitter-Generator“. Der „Niederschlags-Generator“. — **Felder und Ströme in der Atmosphäre: Verlauf.** Prinzipien: Stationäres und nicht-stationäres Geschehen. Klimatologische und synoptische Arbeitsweise. Raumladungen in der Atmosphäre. — Beispiele: Tagesgänge. Die Trennung der einzelnen Generatorwirkungen; „Weltzeitanteil“ und „Ortszeitanteil“. Beispiele zur luftelektrischen Synopsis. — **Die Erscheinungen des Gewitters.** Die Ladungsbildung: Prozesse der Ladungstrennung. Die Steuerung der Gewittermaschine. Energieumsatz im Gewitter. — Der Blitz. Elektromagnetische Wirkungen der Blitzentladungen (Rundfunkstörungen, „atmospherics, spherics“). — **Atmosphärische Radioaktivität.** Die Ionisatoren in der Atmosphäre. Die natürliche Radioaktivität in der Atmosphäre. Die künstliche Radioaktivität in der Atmosphäre. — **Luftlektrizität und Biologie.** — Anhang: Umrechnungsfaktoren. Die elektrischen Größen in verschiedenen Maßsystemen. — Sachverzeichnis.

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND, 2. HEFT

MIT 63 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 27. JANUAR 1958)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Z.
Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R. v. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—.

Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Es wird ausdrücklich darauf aufmerksam gemacht, daß mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag das ausschließliche Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder an den Verlag übergeht. Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind, und die auch nachträglich nicht anderweitig zu veröffentlichen der Autor sich verpflichtet.

Es ist ferner ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages nicht gestattet, photographische Vervielfältigungen, Mikrofilme, Mikrophote u.ä. von den Zeitschriftenheften, von einzelnen Beiträgen oder von Teilen daraus herzustellen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Autorenkorrekturen, d. h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihren Arbeiten 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin W 35, Reichpietschufer 20, Tel. 2492 51,

Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28—30, Tel. 27901

150. Band	Inhalt	2. Heft Seite
SCHMILLEN, A., Zur Frage der Energieübertragung in festen Polyacetylenlösungen. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 15. Oktober 1957)		123
HEINTZE, J., Relativmessungen der Polarisierung von β -Teilchen Ti^{204} , Au^{198} , $Sr^{90} + Y^{90}$. Mit 5 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. Oktober 1957)		134
DANIEL, H., β -Übergang zwischen den Grundzuständen von Co^{58} und Fe^{58} . Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. November 1957)		144
HERRE, F., und H. RICHTER, Berechnung der Atomverteilungskurven verschiedener Strukturmodelle. Mit 9 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. September 1957)		149
DAVID, E., Physikalische Vorgänge bei elektrischen Drahtexplosionen. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 1. August 1957)		162
FROMMHOLD, L., Zur Statistik der Elektronenlawinen im ebenen Feld. II. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. September 1957)		172
HETTNER, G., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 4. November 1957)		182
THEIS, W. R., Der Einfluß der Elektronenpolarisation auf den Wirkungsquerschnitt für Paarvernichtung im Fluge. (Eingegangen am 15. Juni 1957)		198
BÖCKMANN, K., G. KRAMER und W. R. THEIS, Der Einfluß der Polarisierung auf die Wirkungsquerschnitte für Møller- und Bhabha-Streuung. Eingegangen am 10. Oktober 1957)		201
BOLDT, G., Messung der Absorptionsschwingungsstärke der Magnesium-Interkombinationslinie bei 4571 Å. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. September 1957)		205
VOIGTLÄENDER-TETZNER, G., Zur Theorie der röntgenographischen Verteilungskurven von Flüssigkeiten und amorphen Stoffen. Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 15. Oktober 1957)		215
WIENECKE, R., Über das Auftreten von Dampfstrahlen in Kohlelichtbögen hoher Stromstärken. I. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 4. November 1957)		231
SODHA, M. S., and P. C. EASTMAN, Mobility of electrons in nondegenerate semiconductors considering electron-electron scattering. With 1 Figure in the text. (Eingegangen am 11. November 1957)		242

KLIER, M., Die Temperaturabhängigkeit der optischen Konstanten von Lithiumfluorid und Natriumfluorid im Ultraroten. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 17. September 1957)	49
KOPPE, H., Eine Extremaleigenschaft der freien Energie. (Eingegangen am 5. November 1957)	64
SCHÖNHOFER, A., Zur Temperaturabhängigkeit der Energielücke im Bändermodell des Festkörpers. (Eingegangen am 7. September 1957)	67
MINTEN, A., und O. OSBERGHAUS, Die Erzeugung von intensiven Molekularstrahlen nicht kondensierender Gase. Wirkungsquerschnitte für den Stoß H_2-H_2 und H_2-N_2 . Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. Oktober 1957)	74
BIENLEIN, H., R. FLEISCHMANN und H. WEGENER, Die Polarisierung der Co^{60} -Elektronen. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 24. Oktober 1957)	80
RISCH, K., Das Spektrum der M - und L -Auger-Elektronen von $^{212}_{83}Bi$ und $^{208}_{81}Tl$. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. Oktober 1957)	87
REIMER, L., Magnetische Eigenschaften und elektronenmikroskopische Struktur elektrolytisch niedergeschlagener dünner Schichten aus Nickel-Eisen-Legierungen. Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. September 1957)	99
BORN, M., und W. LUDWIG, Zur Quantenmechanik des kräftefreien Teilchens. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. September 1957)	106
KOHLER, M., Invariante Flächen der Elektrodynamik. (Eingegangen am 8. Oktober 1957)	118
Berichtigung zu D. HAHN und F. W. SEEMANN: Die Bedeutung von Randschichten und Polarisationsfeldern für die Elektrolumineszenz. Diese Zeitschrift Bd. 149, S. 486 bis 503 (1957)	122

Die Sonne

Von Dr. Karl Otto Kiepenheuer, Professor an der Universität Freiburg i. Br. und Leiter des Fraunhofer-Institutes (Verständliche Wissenschaft, 68. Band.) 1.—6. Tausend. Mit 76 Abbildungen. VIII, 150 Seiten Kl.-8°.

Ganzleinen DM 7.80

Inhaltsübersicht: Einführung. Kleine Geschichte der Sonnenforschung. Die Sonnenfamilie. Die Sonnenoberfläche. Das Sonnenlicht. Sonnentürme. Sonnenfinsternisse. Die veränderlichen Erscheinungen auf der Sonne. Das Innere der Sonne. Radiowellen von der Sonne. Sonne und Erde. Schluß.

SPRINGER-VERLAG

BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG



Silizium-Photoelemente

10 fache Leistung

Höchste Konstanz, temperaturbeständig, ermüdungsfrei, geringe Trägheit, Empfindlichkeitsbereich 300—1800 nm, korrosionsfest und unempfindlich gegen Feuchtigkeit. In verschiedener Ausführung mit Anschlußklemmen, Schraub- und Steckfassung von 4—30 mm Ø.

Zellenbatterien für 2 und 6 V.

Verlangen Sie Liste 1 S./Z. P.

Spezialfabrik

lichtelektrischer Zellen und Apparate

Dr. B. LANGE

Berlin-Zehlendorf, Hermannstraße 14—18

Fernruf : 84 30 51 — Drahtanschrift : Photozelle Berlin — Fernschreiber : 018 31 63

Vor kurzem erschien:

Morphological Astronomy

By F. Zwicky, Professor of Astrophysics California Institute of Technology and Astronomer, Mount Wilson and Palomar Observatories. With 55 Figures. IV, 299 Seiten Gr.-8°. 1957. Ganzleinen DM 49.60

Table of Contents: Foreword. — Morphological Research and Invention. — Clouds and Clusters of Galaxies. — The Large Scale Distribution of Galaxies and of Clusters of Galaxies. — Kinematic and Dynamic Characteristics of the Large Scale Aggregates of Matter. — Dimensional and Dimensionless Morphology in Cosmology. — Morphological Features of Individual Galaxies. — Morphological Astronomical Kaleidoscope. — The Morphological Method and a priori Knowledge. The Magic Numbers. — Epilogue. — Bibliography. — Name Index. — Subject Index.

Die vor fünfzehn Jahren neu eingeführte morphologische Forschungsmethode hat seither eine erfolgreiche Entwicklung durchgemacht und hat auf verschiedenen Gebieten, wie denen der Strahltriebwerke, der Triebstoffchemie, der Lehrmethoden, der Kriegswissenschaft u. a. schöne Erfolge erzielt. Morphologische Forschung ist Totalitätsforschung, aufgebaut auf einer Philosophie Vorurteilslosigkeit und ausgerüstet mit den Mitteln einer durchschlagenden Methodik. Im gegenwärtigen Buch werden die Grundprinzipien dieser neuen Forschungsart beschrieben und auf mannigfache astronomische Probleme angewandt. Es werden vor allem die Großverteilung der Materie im Weltall und die mit ihr zusammenhängenden Phänomene untersucht. Es wird gezeigt, daß die kosmische Zeitskala und die Entwicklung des Weltalls als Ganzes, sowie die Frage der Expansion oder Nicht-Expansion des Weltalls zu ihrer Aufklärung ein viel größeres Tatsachenmaterial erfordern, als es uns heute zur Verfügung steht. Die morphologische Forschung weist hier neue Wege und hat durch die sukzessive Entwicklung der Methoden der dimensionslosen, der phänomenologischen und der absoluten (dimensionellen) Morphologie zur Entdeckung unbekannter Klassen von Sternen, von Supernovae, von Zwerggalaxien, Nebelhaufen und intergalaktischer Materie geführt.

Es wird weiter gezeigt, wie die morphologischen Methoden durch eine neuartige Analyse der Leistungscharakteristiken der menschlichen Sinne auf einem festen Fundament verankert werden können.

Morphologische Astronomie interessiert sich notwendigerweise nicht nur für rein wissenschaftliche Fragen, sondern für alle Umstände, welche die Ziele der Astronomie fördern oder hindern. Sie behandelt deshalb auch die sozialen Auswirkungen der Astronomie, ihre Beziehungen zum Leben der Gemeinschaft und die sozialen Verpflichtungen der Astronomen.

Dieses Buch stellt die erste größere Zusammenfassung des Werkes eines vielseitigen, auf mehreren Gebieten ungewöhnlich erfolgreichen Astronomen, Physikers und originellen Denkers dar. Es wird durch die Frische und Unvoreingenommenheit, mit der im Zusammenhang mit dem engeren Thema das Verhältnis von wissenschaftlicher Methode und Leben beleuchtet wird, einen weiten, allgemein interessierten Leserkreis ansprechen.

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

Dieses Heft enthält einen Prospekt der Firma Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig.

Verantwortlich für den Anzeigenteil: Günter Holtz, Berlin W 35, Reichpietschufer 20 — Springer-Verlag Berlin · Göttingen · Heidelberg — Druck der Universitätsdruckerei H. Stötz AG, Wiesbaden

MAR 31 1958

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND, 3. HEFT

MIT 40 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 14. FEBRUAR 1958)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von *K. Scheel* und *H. Geiger*, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von *M. v. Laue* und *R. W. Pohl*. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „**Zeitschrift für Physik**“ erscheint nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—.

Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Es wird ausdrücklich darauf aufmerksam gemacht, daß mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag das ausschließliche Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder an den Verlag übergeht. Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind, und die auch nachträglich nicht anderweitig zu veröffentlichen der Autor sich verpflichtet.

Es ist ferner ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages nicht gestattet, photographische Vervielfältigungen, Mikrofilme, Mikrophote u.ä. von den Zeitschriftenheften, von einzelnen Beiträgen oder von Teilen daraus herzustellen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihren Arbeiten 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin W 35, Reichpietschufer 20, Tel. 249251,
Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28-30, Tel. 27901

150. Band	Inhalt	3. Heft Seite
KRETSCHMAR, M., Über die multiple Mesonenproduktion bei Nukleon-Nukleon-Stößen und bei der Nukleon-Antinukleon-Vernichtung. Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 16. Oktober 1957)		247
STICHEL, P., Die Frage der Zeitumkehrinvarianz in starken Wechselwirkungen. (Eingegangen am 25. Oktober 1957)		264
KESSEMEIER, H., Über die Wirkung eines Doppelgitters auf die Ladungsträger einer unselbständigen Entladung. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 2. November 1957)		272
REIMER, L., Messungen des Hall-Effektes an ferromagnetischen Nickelschichten. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 6. November 1957)		277
KRISHNAMURTHY, V. G., Ultra-violet bands of mercury chloride. With 1 Figure in the text. (Eingegangen am 7. Oktober 1957)		287
MARSCHALL, H., und Th. SCHMIDT, Potentialkurven und Energieniveaus der μ -Mesonenmoleküle ($p\bar{p}\mu$, $d\bar{p}\mu$, $dd\mu$). Mit 3 Figuren im Text. (Eingegangen am 23. November 1957)		293
SCHMIDT-TIEDEMANN, K. J., Elektronennachlieferung in den Gasen N_2 , H_2 und O_2 bei niedrigen Drucken ($p \approx 50$ Torr · cm). Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 2. November 1957)		299
BEHR, J. v., Die Berechnung der Kern-Quadrupol-Streuung positiver Myonen im schwach relativistischen Energiebereich. Mit 5 Figuren im Text. (Eingegangen am 23. November 1957)		311
HOPKINS, M. R., and R. LL. GRIFFITH, The determination of the Lorenz number at high temperatures. (Eingegangen am 25. April 1957)		325
SCHORYGIN, P., und L. KRUSCHINSKI, Abhängigkeit der Intensität der Raman-Linien von der Frequenz des Erregerlichtes im Resonanzgebiet. (Eingegangen am 21. Dezember 1957)		332
BÖTTCHER, W., Quantitative Messung des 3^3P -Seriengrenzkontinuums von Mg. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 12. September 1957)		336
LUDWIG, G., Zum Ergodensatz und zum Begriff der makroskopischen Observablen. I. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 25. September 1957)		346
CAPPELLER, U., und R. KLINGELHÖFER, Über die Messung der Winkelkorrelationen im γ -Spektrum des ^{169}Tm . Mit 7 Figuren im Text. (Eingegangen am 9. November 1957)		375

Sitzungsberichte der Heidelberger Akademie der Wissenschaften

Mathematisch-naturwissenschaftliche Klasse. Jahrgang 1956/57. 4. Abhandlung: Symposium über Probleme der Spektralphotometrie am 27. und 28. Februar 1957 in Heidelberg. Im Auftrag der Heidelberger Akademie der Wissenschaften herausgegeben von **H. Kienle**. Mit 33 Abbildungen und 11 Tabellen.

89 Seiten. Gr.-8°. 1957 DM 14.60

SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG



Silizium-Photoelemente

10 fache Leistung

Höchste Konstanz, temperaturbeständig, ermüdungsfrei, geringe Trägheit, Empfindlichkeitsbereich 300—1800 nm, korrosionsfest und unempfindlich gegen Feuchtigkeit. In verschiedener Ausführung mit Anschlußklemmen, Schraub- und Steckfassung von 4—30 mm Ø.

Zellenbatterien für 2 und 6 V.

Verlangen Sie Liste 1 S./Z. P.

Spezialfabrik
lichtelektrischer Zellen und Apparate

Dr. B. LANGE

Berlin-Zehlendorf, Hermannstraße 14—18

Fernruf : 84 30 51 — Drahtanschrift : Photozelle Berlin — Fernschreiber : 018 31 63

Integraltafeln zur Quantenchemie

Von Dr. **H. Preuss**, Max-Planck-Institut für Physik, Göttingen. Zweiter Band. VII, 143 Seiten 4°. 1957. Ganzleinen DM 36.—

Inhaltsverzeichnis: Erster Teil: **Bezeichnungen, Integralformeln und Literaturverzeichnis**. Einleitung und Bezeichnung der Integrale. Die Berechnung der Integrale. Übersicht über die bisher tabellierten Funktionen und Integrale einschließlich der im Teil 2 angegebenen (Fortsetzung des I. Bandes). Literaturverzeichnis. — Zweiter Teil: **Tabellen**. Hilfsfunktionen. Wechselwirkungsintegrale der *K*- und *L*-Schale mit verschiedenen Abschirmzahlen α , β in den (normierten) Slaterfunktionen.

Früher erschien:

Erster Band: VI, 162 Seiten 4°. 1956.

Ganzleinen DM 39.—

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

Handbuch der Physik Encyclopedia of Physics

Herausgegeben von

S. Flügge

Marburg, Deutschland

54 Bände

Soeben erschien in Gruppe II:

Prinzipien der theoretischen Physik

Principles of theoretical physics

(Umfaßt die Bände III—V)

Band V/1. Teil:

Prinzipien der Quantentheorie I

Principles of Quantum Theory I

Mit 7 Figuren. V, 376 Seiten Gr.-8°. 1958.

Ganzleinen DM 90.—

Subskriptionspreis Ganzleinen DM 72.—

Inhaltsübersicht: Die allgemeinen Prinzipien der Wellenmechanik. Von W. Pauli, Zürich/Schweiz. — Quantenelektrodynamik. Von G. Källén, Kopenhagen/Dänemark. — Sachverzeichnis (Deutsch—Englisch). — Subject Index (English—German).

Im Februar 1958 erscheint in Gruppe VI:

Röntgenstrahlen und Korpuskularstrahlen

X-rays and corpuscular rays

(Umfaßt die Bände XXX—XXXIV)

Band XXXIV

Korpuskeln und Strahlung in Materie II

Corpuscles and Radiation in Matter II

Mit etwa 213 Figuren. Etwa 330 Seiten Gr.-8°. 1958.

Vorbestellpreis Ganzleinen DM 62.40

Endgültiger Ladenpreis nach Erscheinen Ganzleinen DM 78.—

Inhaltsübersicht: Durchgang langsamer Elektronen und Ionen durch Gase. Von R. Kollath, Mainz. — The Passage of Fast Electrons Through Matter. By R. D. Birkhoff, Oak Ridge/Tennessee (USA). — Positronium. Von L. Simons, Helsingfors (Finnland). — X-ray Production by Heavy Charged Particles. By E. Merzbacher, Chapel Hill, North Carolina (USA), and H. W. Lewis, Durham, North Carolina (USA). — Compton Effect. By R. D. Evans, Cambridge, Mass. (USA). — The Energy Loss of Charged Particles in Matter. By W. Whaling, Pasadena, Cal. (USA). — Sachverzeichnis (Deutsch—Englisch). Subject Index (English—German).

Bei Verpflichtung zur Abnahme des Gesamtwerkes gelten die Vorbestellpreise auch nach Erscheinen der Bände weiter als Subskriptionspreis, jedoch ist jeder Band zum Ladenpreis einzeln käuflich.

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

MAR 6 1958

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND, 4. HEFT

MIT 51 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 10. MÄRZ 1958)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Z.
Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von *K. Scheel* und *H. Geiger*, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von *M. v. Laue* und *R. W. Pohl*. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—.

Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Es wird ausdrücklich darauf aufmerksam gemacht, daß mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag das ausschließliche Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder an den Verlag übergeht. Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind, und die auch nachträglich nicht anderweitig zu veröffentlichen der Autor sich verpflichtet.

Es ist ferner ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages nicht gestattet, photographische Vervielfältigungen, Mikrofilme, Mikrophote u. ä. von den Zeitschriftenheften, von einzelnen Beiträgen oder von Teilen daraus herzustellen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Hazel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Autorenkorrekturen, d. h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihren Arbeiten 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin W 35, Reichpietschufer 20, Tel. 24 92 51,

Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28—30, Tel. 279 01

150. Band	Inhalt	4. Heft Seite
WEIDENMÜLLER, H.-A., Nukleonenpolarisation bei Strippingreaktionen. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 5. November 1957)		389
ASCOLI, G., Transformation of "Spin Direction" by Ordinary Lorentz Transformation. With 4 figures in the text. (Eingegangen am 5. Dezember 1957)		407
KLITZING, K.H.v., und J. GIELESSSEN, Über den Einfluß allseitigen Drucks auf die Magnetisierbarkeit von Au_2Mn . Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 5. Dezember 1957)		409
LEIFFINGER, H., Die magnetischen Eigenschaften von seltenen Erdmetallen bei sehr tiefen Temperaturen. Mit 11 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. November 1957)		415
GUDDEN, F., und J. EICHLER, Winkel- und Energieverteilung der Photoprotonen aus dem Prozeß $A^{40}(\gamma, p)Cl^{39}$. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 18. November 1957)		436
DESTRIAU, G., Der Gedächtniseffekt bei der Verstärkung der Lumineszenz durch elektrische Felder. Mit 8 Figuren im Text. (Eingegangen am 20. Dezember 1957)		447
ENGELMANN, F., Bemerkungen zur Einführung des 3-dimensionalen Ladungsraums. (Eingegangen am 15. August 1957)		456
BRIX, P., U. HEGEL, K. H. LINDENBERGER und D. QUITMANN, Relativmessung integrierter Wirkungsquerschnitte für den Kernphotoeffekt: Die Reaktion $Ca^{44}(\gamma, p)K^{43}$. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 7. Dezember 1957)		461
MÜHLSCHLEGEL, B., und H. KOPPE, Theorie der Vielfachstreuung polarisierter Elektronen. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 7. Dezember 1957)		474
LEIBFRIED, G., und H. HAHN, Zur Temperaturabhängigkeit der elastischen Konstanten von Alkalihalogenidkristallen. Mit 10 Figuren im Text. (Eingegangen am 19. November 1957)		497
Berichtigung zur Arbeit BARTELS, H., und R. BEUCHELT: Über die typischen Erscheinungsformen im Spektrum dichter Plasmen. I. Erschienen in Bd. 149, S. 594—607 (1957)		526

Ein Werk von internationalem Rang

MAX PLANCK

Physikalische Abhandlungen und Vorträge

Aus Anlaß des 100. Geburtstages (am 23. 4. 1958) Max Plancks geben die Physikalische Gesellschaft Berlin und die Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften Göttingen seine grundlegenden Aufsätze und Vorträge erstmalig geschlossen in drei Bänden heraus. Das Vorwort schrieb Prof. Dr. M. von Laue.

Die drei Ganzleinenbände mit einem Gesamtumfang von etwa 1900 Seiten nebst Register erscheinen Mitte Februar, März und April 1958. Der Kauf des Bandes 1 verpflichtet zur Abnahme aller drei Bände. Der Preis für Band 1 bis 3 beträgt DM 150.—

Sonderprospekt (mehrseitig, dreisprachig und mit vollem Inhaltsverzeichnis) bitte vom Verlag anfordern!

FRIEDR. VIEWEG & SOHN · BRAUNSCHWEIG



Spiegel-

Einfach- und Doppel-

Monochromatoren

Carl Leiss

Berlin-Steglitz, Feuerbachstr. 26

Physik des täglichen Lebens

Eine Anleitung zu physikalischem Denken und zum Verständnis der physikalischen Entwicklung. Von Professor **Walther Gerlach**, Vorstand des I. Physikalischen Instituts, München. VII, 187 Seiten Gr.-8°. 1957.

Englische Broschur DM 12.60

Inhaltsübersicht: Der atomistische Bau der Materie. — Die Atomistik der Elektrizität. — Bau und Energie der Atomkerne. — Die elektromagnetische Strahlung. — Die Atomistik der Strahlung.

SPRINGER-VERLAG

BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

Technische Physik in Einzeldarstellungen

Herausgegeben von W. Meissner.

12. Band: **Mikrowellen-Meßtechnik**

Von Dr. Friedrich J. Tischer, Assoc. Professor der Ohio State University. Mit 257 Abbildungen. XI, 310 Seiten Gr.-8°. 1958. Ganzleinen DM 54.—

Inhaltsübersicht: **Einleitung.** Arten der Mikrowellenmessungen. Meßgrößen und Maßsystem. Schaltbilder und Terminologie. — **Frequenzmessung.** Orientierungs-Frequenzmesser. Die Genauigkeit der direkten Wellenlängenmessung. Präzisions-Frequenzmesser mit Hohlraumkreisen. Zylindrische Hohlraum-Frequenzmesser. Überlagerungs-Frequenzmesser. Frequenzdeviations-Meßgeräte. Frequenzstabilisierung von Mikrowellen-Oszillatoren. Mikrowellen-Spektroskopie. Spektralanalyse. — **Leistungsmessung.** Kalorimetrische Leistungsmessung. Thermische Meßmethoden für kleine Leistungen. Durchgangs-Leistungsmesser. Leistungsmessung bei Impulsbetrieb. Anzeige und Vergleich extrem kleiner Leistungen. — **Anpassungs- und Impedanzmessung.** Grundlagen und Meßgrößen. Impedanzbestimmung mittels Strom-Spannungsmessung. Meßmethode mit Hilfe der Meßleitung. Anpassungsmessung mittels fester Sonden. Drehbare Hohlleitersonde. Richtkoppler. Anpassungskomparatoren. — **Abschlußelemente.** Angepaßte Leitungsabschlüsse. Abschlußelemente mit verschiebbarem Kurzschluß. — **Durchgangselemente.** Charakteristische Meßgrößen und ihre Beziehungen. Meßmethoden. Durchgangselemente mit Verlusten. Messung der Daten von Filtern. Einstellbare Anpassungs- und Impedanztransformatoren. Phasendrehglieder. Dämpfungsglieder. Durchgangselemente mit Ferriten. — **Messung des Gütewertes von Hohlraumkreisen.** Definition der Gütewerte und physikalische Zusammenhänge. Hohlraumkreis als Abschlußelement. Hohlraumkreis in der Schaltung als Durchgangselement. Hohlraumkreis als Leitungsdiskontinuität. Zur Genauigkeit der Gütewertmessung. — **Materialmessung.** Materialkonstanten und ihre Bestimmung. Wellenausbreitung und elektrische Materialkonstanten in Leitungen. Reflexion an Dielektrikum-Grenzflächen in Leitungen. Messung an Dielektrika. Anpassungstransformator für Materialmessungen. Materialmessung in Hohlraumkreisen. Messung der Eigenschaften ferromagnetischer Materialien. Leitfähigkeitsmessung. Materialkonstanten einiger Dielektrika und Leiter. — **Antennenmessung.** Antennen, ihre Eigenschaften und charakteristischen Daten. Gewinnfaktor und effektive Antennenfläche. Das Strahlungsdiagramm und seine Auswertung. Gewinnfaktoren und Absorptionsflächen üblicher Antennen. Messung der Daten von Antennen. — **Feldstärke- und Feldverteilungsmessung.** Feldstärkemessung mittels Sonden. Messung der Rückwirkung von Probekörpern. Bestimmung der Feldverteilung mit Hilfe von Analogienetzen. — **Rauschmessung.** Rauschursachen, Meßgrößen und Beziehungen. Rauschbeiträge verschiedener Mikrowellenbauteile. Rauschquellen. Rauschmessung an Verstärkern und Empfängern. — **Namenverzeichnis. Sachverzeichnis.**

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
J. F. BERGMANN / MÜNCHEN

JUN 2 1958

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

150. BAND, 5. (SCHLUSS-)HEFT

MIT 56 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 8. APRIL 1958)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1958

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R. W. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—.

Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Es wird ausdrücklich darauf aufmerksam gemacht, daß mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag das ausschließliche Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder an den Verlag übergeht. Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind, und die auch nachträglich nicht anderweitig zu veröffentlichen der Autor sich verpflichtet.

Es ist ferner ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages nicht gestattet, photographische Vervielfältigungen, Mikrofilme, Mikrophote u.ä. von den Zeitschriftenheften, von einzelnen Beiträgen oder von Teilen daraus herzustellen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihren Arbeiten 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin W 35, Reichpietschufer 20, Tel. 24 92 51,
Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28-30, Tel. 279 01

150. Band	Inhalt	5. (Schluß-)Heft Seite
HANSZEN, K.-J., Der Einfluß von Oberflächenfremdschichten auf die Strukturveränderungen dünner Metallaufdampfschichten beim Tempern. Mit 15 Figuren im Text. (Eingegangen am 25. September 1957)		527
LÄMMERMANN, H., Zeeman-Effekt und Analyse der Spektren des dreiwertigen Samariums in Einkristallen verschiedener Symmetrie. Mit 16 Figuren im Text. (Eingegangen am 22. Oktober 1957)		551
ARTMANN, K., Die Bedeutung der Hartreeschen Atomeigenfunktionen für die Quantenchemie. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 28. November 1957)		573
THEIS, W.R., Eine Rangordnung der einzelnen Terme in den schwachen Wechselwirkungen. (Eingegangen am 20. Dezember 1957)		590
HAUSER, U., Energiereiche γ -Übergänge geringer Intensität beim Zerfall $^{131}_{83}\text{Bi}^{214}(\text{RaC}) \xrightarrow{\beta} ^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 21. Dezember 1957)		593
HAUSER, U., Über den γ - und α -Zerfall der angeregten Zustände von $^{130}_{84}\text{Po}^{214}(\text{RaC}')$. Mit 4 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. Januar 1958)		599
WULFF, H., Die Linienprofile thermisch angeregter Heliumlinien. Mit 9 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. September 1957)		614
KRANZ, J., und W. DRECHSEL, Über die Beobachtung von Weißschen Bereichen in polykristallinem Material durch die vergrößerte magneto-optische Kerrdrehung. Mit 6 Figuren im Text. (Eingegangen am 11. Januar 1958)		632
JACKSON, J.D., S.B. TREIMAN and H.W. WYLD jr., Note on Relativistic Coulomb Wave Functions. (Eingegangen am 24. Januar 1958)		640
HITTMAIR, O., Ausbeute von $(d, 2n)$ -Reaktionen im Kontinuumbereich. (Eingegangen am 20. September 1957)		648
RADICELLA, R., J. RODRÍGUEZ, G.B. BARÓ und O. HITTMAIR, Die Ausbeute der Kernreaktion $\text{Al}^{27}(d, 2p)\text{Mg}^{27}$. Mit 1 Figur im Text. (Eingegangen am 10. Oktober 1957)		653
LAUTERJUNG, K.H., B. SCHIMMER und H. MAIER-LEIBNITZ, Die Art der Gamow-Teller-Wechselwirkung beim Zerfall von Li^8 . Mit 2 Figuren im Text. (Eingegangen am 27. März 1958)		657
Autorenverzeichnis		660

Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms

By Hans A. Bethe, John Wendell Anderson Professor of Physics, and Edwin E. Salpeter, Professor of Physics and Nuclear Studies, Cornell University, Ithaca, New York/USA. With 41 Figures. VIII, 369 Seiten Gr.-8°. 1957.

Ganzleinen DM 42.—

SPRINGER-VERLAG

BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG



Silizium-Photoelemente

10 fache Leistung

Höchste Konstanz, temperaturbeständig, ermüdungsfrei, geringe Trägheit, Empfindlichkeitsbereich 300 — 1800 nm, korrosionsfest und unempfindlich gegen Feuchtigkeit. In verschiedener Ausführung mit Anschlußklemmen, Schraub- und Steckfassung von 4—30 mm Ø.

Zellenbatterien für 2 und 6 V.

Verlangen Sie Liste 1 S./Z. P.

Spezialfabrik
lichtelektrischer Zellen und Apparate

Dr. B. LANGE

Berlin-Zehlendorf, Hermannstraße 14—18

Fernruf : 84 30 51 — Drahtanschrift : Photozelle Berlin — Fernschreiber : 01831 63

RÖNTGEN-FEINSTRUKTURUNTERSÜCHUNGEN
UND RÖNTGEN-SPEKTRALANALYSE

mit

MÜLLER MIKRO 91
MÜLLER MIKRO 101
MÜLLER MIKRO 111

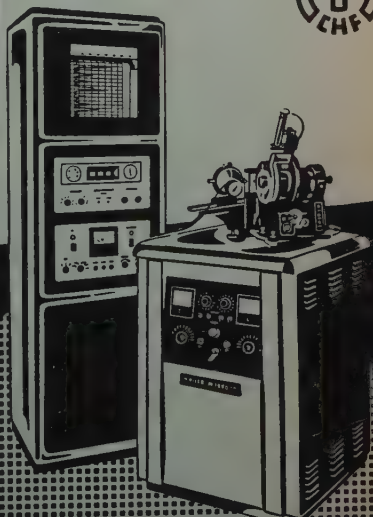
und

PHILIPS DIFFRAKTOMETER

C.H.F. MÜLLER

AKTIENGESELLSCHAFT

RÖNTGENWERK · HAMBURG



Handbuch der Physik Encyclopedia of Physics

Herausgegeben von

S. Flügge

Marburg, Deutschland

54 Bände

Mit Beiträgen in deutscher, englischer und französischer Sprache
Jeder Band ist einzeln käuflich

Im April 1958 erscheint in Gruppe VIII

Kernphysik

Nuclear Physics

(Umfaßt die Bände XXXVIII—XLV)

Band XLV

Instrumentelle Hilfsmittel der Kernphysik II Nuclear Instrumentation II

Mit etwa 293 Figuren. Etwa 600 Seiten Gr.-8°. 1958

Vorbestellpreis gültig bis zum Erscheinen Ganzleinen DM 102.40

Endgültiger Ladenpreis nach Erscheinen Ganzleinen DM 128.—

Bei Verpflichtung zur Abnahme des Gesamtwerkes gilt der Vorbestellpreis auch nach Erscheinen des Bandes weiter als Subskriptionspreis, jedoch ist jeder Band zum Ladenpreis einzeln käuflich

Inhaltsübersicht: **Ionization Chambers in Nuclear Physics.** By H. W. Fulbright, Rochester, New York (USA). — **Geiger Counters.** By Serge A. Korff, New York, USA. — **Scintillation and Čerenkov Counters.** By William E. Mott and Roger B. Sutton, Pittsburgh, Pa. (USA). — **The Proportional Counter as Detector and Spectrometer.** By S. C. Curran, Aldermaston, Berkshire (Great Britain). — **The Coincidence Method.** By S. De Benedetti and R. W. Findley, Pittsburgh, Pa. (USA). — **Cloud Chambers.** By Carl M. York, Chicago, Ill. (USA). — **The Bubble Chamber.** By Donald A. Glaser, Michigan (USA). — **Nuclear Emulsions.** By Maurice M. Shapiro, Washington (USA). — **Detection of Neutrons.** By H. H. Barschall, Madison, Wisconsin (USA). — **High Energy Neutron Detectors.** By R. T. Siegel, Pittsburgh, Pa. (USA). — Sachverzeichnis (Deutsch—Englisch). — Subject Index (English—German).

SPRINGER-VERLAG / BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

DATE DUE

JUL 21 '85

~~PER~~

RETD JUL 19 1985

PERIODICALS MUST BE RETURNED
TO PERIODICALS DESK ONLY.

THE UNIVERSITY OF ILLINOIS AT CHICAGO



3 8198 318 811 781

